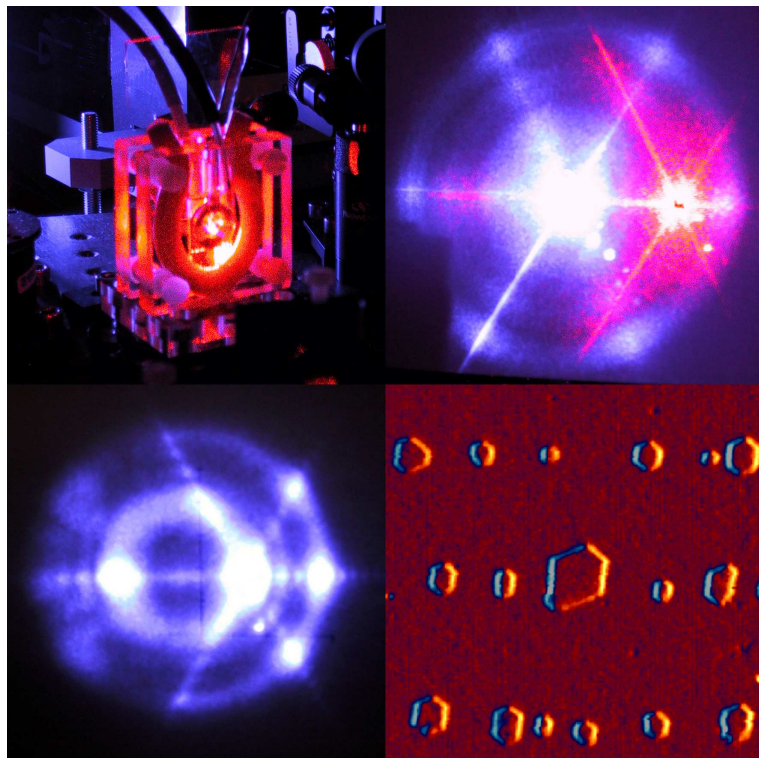


Manfred Müller

Wechselwirkung von Licht mit ferroelektrischen Domänen in Lithiumniobat- und Lithiumtantalat-Kristallen



Wechselwirkung von Licht
mit ferroelektrischen Domänen
in Lithiumniobat- und
Lithiumtantalat-Kristallen

Dissertation

zur
Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)
der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

vorgelegt von
Manfred Müller
aus
Osnabrück

Bonn, Juni 2004

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	4
2.1	LiNbO ₃ - und LiTaO ₃ -Kristalle: Struktur und kristallographische Eigenschaften	4
2.1.1	Kristallstruktur	4
2.1.2	Wichtige kristallographische Eigenschaften	5
2.2	Ferroelektrische Eigenschaften	7
2.2.1	Schalten von Domänen in LiNbO ₃ und LiTaO ₃	7
2.2.2	Dynamik des Polungsprozesses	8
2.3	Erzeugung ferroelektrischer Domänenstrukturen	11
2.4	Visualisierung ferroelektrischer Domänenmuster	14
3	Experimentelle Methoden	16
3.1	Kristalle	16
3.2	Der Polungsaufbau	16
3.2.1	Allgemeine Anforderungen	16
3.2.2	Der Probenhalter	18
3.3	Umpolung und Koerzitivfeldmessung	19
3.3.1	Messung des Polungsstroms	20
3.3.2	Interferometrische Beobachtung der Umpolung	21
3.3.3	Periodisches Polen mit strukturierten Elektroden	23
3.4	Beleuchtung mit einem Lichtmuster	25
3.5	Beobachtung der Beugungsmuster	26
4	Experimentelle Ergebnisse	29
4.1	Charakterisierung des Polungsverhaltens der verwendeten Proben ohne Licht	29
4.1.1	Messung der Koerzitivfeldstärke und der Polungsqualität	29
4.1.2	Messung der schnellen Relaxation des Koerzitivfeldes	31
4.1.3	Spontane und erzwungene Domänenmuster	32
4.2	Einfluss von Licht auf die ferroelektrischen Eigenschaften von LiNbO ₃	33

4.2.1	Thermische Effekte	34
4.2.2	Lichteinfluss auf die schnelle Relaxation	35
4.2.3	Einfluss intensiven UV-Lichts auf den Polungsprozess . . .	36
4.3	Einfluss von ferroelektrischen Domänen auf transmittiertes Licht .	38
4.3.1	Direkte Visualisierung ferroelektrischer Domänenwände im Nahfeld	39
4.3.2	Lichtbeugung an einer einzelnen Domänenwand im Fernfeld	41
4.3.3	Lichtbeugung an periodisch gepoltem LiNbO ₃	43
4.3.4	Sternförmige Beugungsmuster an spontanen Domänenstrukturen	47
4.3.5	Dynamik des Fernfeld-Beugungsmusters während des Polens	57
5	Diskussion	62
5.1	Umpolen ohne Beleuchtung	62
5.2	Lichteinfluss auf den Polungsprozess	64
5.2.1	Thermische Einflüsse	64
5.2.2	Schnelle Relaxation des Koerzitivfeldes	65
5.2.3	Einfluss intensiven UV-Lichts auf den Polungsprozess . . .	66
5.3	Visualisierung von Domänen im Nahfeld	68
5.4	Beugungsmuster von Domänen im Fernfeld	71
5.4.1	Lichtbeugung an einer einzelnen Domänenwand	71
5.4.2	Sternförmige Lichtmuster bei spontanen Domänenstrukturen	76
5.4.3	Periodisch gepoltes Lithiumniobat	83
5.5	Fazit	86
6	Ausblick	88
7	Zusammenfassung	89
A	Lichtbeugung	91
A.1	Skalare Beugungstheorie	91
A.2	Beugung an einem Brechungsindexsprung im Kristall	92
	Literaturverzeichnis	95

1 Einleitung

Das 19. Jahrhundert wurde von der Mechanik dominiert, so wie das 20. Jahrhundert entscheidend durch die Fortschritte in der Elektronik geprägt wurde. In diesem Sinne wird das 21. Jahrhundert bereits als *Jahrhundert der Photonik* ausgerufen [1, 2, 3]. Das mag übertrieben erscheinen, aber klar ist, dass die Photonik, also die Übertragung, Verarbeitung und Speicherung von Daten mit optischen und opto-elektronischen Mitteln, eine Schlüsseltechnologie der Wissensgesellschaft geworden ist. Gebiete, aus denen schon heute die Optik nicht mehr wegzudenken ist, reichen von der Informations- und Telekommunikationstechnologie (Glasfasernetze, CDs/DVDs) bis hin zur Medizin (Endoskopie, Laserchirurgie).

Dabei gibt es eine deutliche Parallele zwischen Photonik und Elektronik: Um den Bedarf nach immer leistungsfähigeren und trotzdem preiswerteren Komponenten befriedigen zu können, muss die Optik dem von der Elektronik vorgezeichneten Weg folgen, den der Integration und Miniaturisierung. In diesem Bereich gehen Fortschritte in der Optik und in den dazugehörigen Materialwissenschaften wie der Kristallzucht Hand in Hand. So wie die Verfügbarkeit von hochreinem Silizium die Entwicklung integrierter Schaltkreise erst ermöglichte, benötigt auch die integrierte Optik Kristalle von gleichbleibend hoher Qualität und mit genau bekannten Eigenschaften. Das in der integrierten Optik am weitesten verbreitete Material ist Lithiumniobat (LiNbO_3) [4]. Der Grund dafür sind die vielfältigen und oftmals gezielt beeinflussbaren Eigenschaften des Materials. Im besonders interessanten Bereich der nichtlinear-optischen Materialien hat LiNbO_3 deshalb einen Marktanteil von über 75% [5]. Ein ebenfalls vielversprechendes Material für vergleichbare Anwendungen ist Lithiumtantalat (LiTaO_3). Doch trotz des vielfachen Einsatzes beider Materialien sind wichtige physikalische Eigenschaften noch immer uncharakterisiert oder unverstanden.

Es ist seit langem bekannt, dass LiNbO_3 und LiTaO_3 Ferroelektrika sind [6]. Das heißt sie besitzen eine spontane Polarisierung, deren Orientierung durch ein elektrisches Feld geändert werden kann. Wegen der dazu notwendigen hohen Koerzitivfeldstärke von ca. 21 kV/mm wurde diese Eigenschaft jedoch kaum beachtet. Dies änderte sich erst Mitte der 90er Jahre, als zum ersten Mal versucht wurde, LiNbO_3 auf Grund seines hohen nichtlinear-optischen Koeffizienten für die schon 1962 vorgeschlagene Idee der Quasi-Phasenanpassung [7] zur effizienten nichtlinearen Frequenzverdopplung zu nutzen. Bei der Frequenzverdopplung generiert ein Lichtstrahl der Frequenz ω über den nichtlinearen Anteil der elektrischen Suszeptibilität eine Lichtwelle mit der zweiten harmonischen Frequenz 2ω . Auf Grund der chromatischen Dispersion wird sich der Brechungsindex bei den Frequenzen ω und 2ω im Allgemeinen unterscheiden. Beim Durchgang durch das Material wird so zwischen der harmonischen und der fundamentalen Welle eine ständig größer werdende Phasendifferenz auftreten. Da die relative Phasenbe-

ziehung die Richtung des Energieflusses zwischen den beiden Wellen bestimmt, wird aber eine Phasendifferenz zwischen 0 und π benötigt, um eine kontinuierliche Frequenzverdopplung auf der ganzen Länge des Materials zu erreichen. Die Idee der Quasi-Phasenanpassung ist es, eine Phasendifferenz von π wieder auf 0 zurückzusetzen, indem das Vorzeichen der nichtlinearen Suszeptibilität und damit die Phase der frequenzverdoppelten Welle invertiert wird. Dieser Vorzeichenwechsel kann in ferroelektrischen Kristallen durch die Änderung der Orientierung der spontanen Polarisierung erfolgen [8]. Dies gab den Anstoß zur Herstellung sogenannter periodisch gepolter Kristalle, in denen die Richtung der ferroelektrischen Domänen periodisch invertiert wird. Als ferroelektrische Domänen werden dabei Gebiete mit gleicher Ausrichtung der Spontanpolarisierung bezeichnet. Für die Frequenzverdopplung geeignete Periodenlängen liegen typischerweise zwischen 1 und 50 μm , je nach Material und Wellenlänge. Seitdem wurde eine Vielzahl weiterer Anwendungen für Kristalle mit speziellen Domänenstrukturen entwickelt. Beispiele dafür reichen von weiteren Formen der nichtlinearen Frequenzkonversion (optisch parametrische Oszillation, Differenz- und Summenfrequenzerzeugung) [8] über elektrooptische Bragg-Gitter [9] und photonische Kristalle [10] bis hin zur Datenspeicherung [11]. Allen gemeinsam ist, dass sie Kristalle mit genau vorgegebenen Domänenstrukturen im Mikrometer- oder Sub-Mikrometerbereich benötigen.

Periodisch gepolte Lithiumniobat- (periodically poled lithium niobate, PPLN) und Lithiumtantalat-Kristalle (periodically poled lithium tantalate, PPLT) mit Periodenlängen $\geq 10 \mu\text{m}$ sind seit kurzem kommerziell erhältlich [12]. Kleinere Periodenlängen sind jedoch, mit den vorhandenen Methoden zur Erzeugung von Domänenstrukturen, nur sehr schwer zu realisieren [13]. So sind Volumen-PPLN-Kristalle mit Periodenlängen $\leq 3 \mu\text{m}$ bisher überhaupt noch nicht hergestellt worden. Gerade solche kurzen Periodenlängen wären aber für viele Anwendungen wie die Erzeugung von blauem Licht oder für hochselektive Bragg-Gitter in Reflexionsgeometrie notwendig [14, 15].

Ein weiteres Problem besteht im Nachweis und in der Visualisierung erzeugter ferroelektrischer Domänenstrukturen, da sich unterschiedlich orientierte Domänen weder in der Transparenz noch im Brechungsindex unterscheiden. Auf Grund der hohen räumlichen Auflösung und der vergleichsweise einfachen Anwendung wird dafür zur Zeit fast ausschließlich die Methode des Ätzens in Flusssäure mit anschließender optischer Mikroskopie eingesetzt [13, 16]. Dieses Verfahren hat offensichtliche Nachteile: Es ist zumindest teilweise destruktiv und kann weder in Echtzeit noch in-situ eingesetzt werden.

Im Rahmen dieser Dissertation wird eine alternative Möglichkeit zur Herstellung vorgegebener Domänenstrukturen in LiNbO_3 entwickelt. Dazu wird versucht, das zum Umklappen der Domänenorientierung benötigte Koerzitivfeld durch gezielte Beleuchtung zu beeinflussen. Vergleichbare Ansätze sind aus der Literatur für die Ferroelektrika Strontium-Barium-Niobat (SBN) und LiTaO_3 bekannt [17, 18],

nicht jedoch für das weitaus wichtigere LiNbO_3 . Da es sich um einen Volumeneffekt handelt, sollte es mit Licht möglich sein, auch dicke Kristalle präzise zu strukturieren. Dazu wird ein Aufbau vorgestellt, der das Anlegen hoher elektrischer Felder und die präzise Bestimmung des Koerzitivfeldes bei gleichzeitiger Beleuchtung ermöglicht. Der Einfluss von Licht auf das statische und dynamische Verhalten des Koerzitivfeldes wird über einen weiten Spektralbereich untersucht, und erste Versuche zur lichtdefinierten Erzeugung von PPLN werden präsentiert.

Im zweiten Schwerpunkt dieser Arbeit wird umgekehrt der Einfluss von Domänengrenzen auf einfallendes, kohärentes Licht untersucht, sowohl mit als auch ohne äußerem elektrischen Feld. Dazu werden die, bei dem Durchgang des Lichts entlang der z -Richtung eines teilgepolten Kristalls entstehenden, Beugungsmuster beobachtet und analysiert. Dies führt nicht nur zu einem besseren Verständnis der Lichtbeugung an Domänengrenzen, sondern auch zur Entdeckung von zwei neuen komplementären Verfahren zur Visualisierung von Domänenstrukturen in Echtzeit.

2 Grundlagen

Lithiumniobat- und Lithiumtantalat-Kristalle verdanken ihre Beliebtheit als Material für optische Anwendungen ihren vielfältigen und oftmals gezielt beeinflussbaren Eigenschaften. In diesem Kapitel werden die für diese Arbeit relevanten Charakteristika beider Materialien kurz vorgestellt. Ausgehend von der kristallographischen Struktur, wird auf einige der optischen Eigenschaften eingegangen, ehe das ferroelektrische Polungsverhalten im Detail beschrieben wird. Schließlich werden die wichtigsten Methoden zur Kontrolle und zur Visualisierung des Polungsprozesses eingeführt.

2.1 LiNbO₃- und LiTaO₃-Kristalle: Struktur und kristallographische Eigenschaften

2.1.1 Kristallstruktur

Lithiumniobat- und Lithiumtantalat-Kristalle sind isomorph, das heißt sie besitzen die gleiche Kristallstruktur: die Lithium-Ionen von LiNbO₃ werden im LiTaO₃ durch Tantal-Ionen substituiert. Das führt dazu, dass beide Materialien sehr ähnliche physikalische Eigenschaften aufweisen. Allerdings ist LiNbO₃ auf Grund seines geringeren Schmelzpunktes (1253 °C gegenüber 1650 °C [19]) leichter herzustellen und deshalb kommerziell weitaus verbreiteter und besser untersucht. Auch wenn sich die folgende Beschreibung deshalb primär auf Lithiumniobat bezieht, gilt sie genauso für Lithiumtantalat. Abweichende Werte für LiTaO₃ werden in Klammern angegeben.

Eine schematische Darstellung der Kristallstruktur von LiNbO₃ in der ferroelektrischen Phase zeigt Abb. 2.1. Die paraelektrische Phase ist auf Grund der hohen Curietemperatur von $T_C \approx 1210$ °C (LiTaO₃: $T_C \approx 690$ °C) nicht von praktischem Interesse [19]. LiNbO₃ gehört zur Punktgruppe 3m [20]. Das bedeutet, der Kristall ist uniaxial, wobei die kristallographische z -Achse eine 3-zählige, polare Rotationsachse ist. Die Orientierung der z -Achse ist durch die Lage der Kationen in den Sauerstoff-Oktaedern festgelegt. In der $+z$ -Richtung lautet sie: . . . , Leerstelle, Li, Nb, Leerstelle, Li, Nb,

LiNbO₃ wird im allgemeinen nach der Czochralski-Methode in der *kongruent schmelzenden* Zusammensetzung hergestellt. Das heißt, die Zusammensetzung des Kristalls entspricht der Zusammensetzung der Schmelze. Kongruent schmelzendes LiNbO₃ hat einem LiO₂-Anteil von 48.4 Mol% (kongruent schmelzendes LiTaO₃ \approx 48.5 Mol%). Im Vergleich zur Summenformel, Li₁Nb₁O₃ besteht also ein Lithiumdefizit. Das führt dazu, dass kongruent schmelzende Kristalle eine hohe Anzahl intrinsischer Kristalldefekte aufweisen, da Li-Gitterplätze freibleiben oder von Nb- (bzw. Ta-) Ionen besetzt werden. Erst seit kurzem ist es

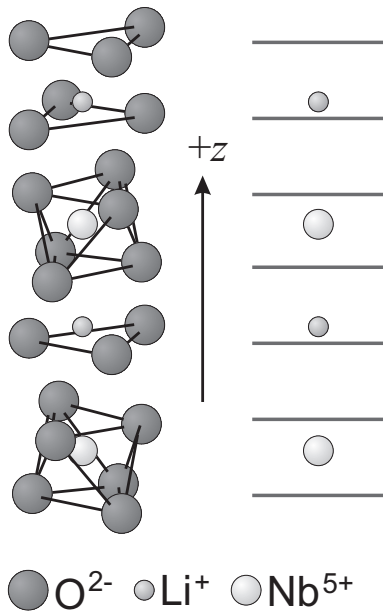


Abb. 2.1: Schematische Darstellung der Kristallstruktur von LiNbO_3 in seiner ferroelektrischen Phase [20]. LiTaO_3 ergibt sich durch Substitution der Nb^{5+} -Ionen mit Ta^{5+} -Ionen. Richtung und Orientierung der z -Achse sind eingezeichnet. Die rechte Seite zeigt die Lage der Kationen relativ zu den Ebenen der Sauerstoff-Oktaeder.

möglich auch nahezu stöchiometrische Kristalle mit einem ausgeglichenem Li/Nb- (bzw. Li/Ta-) Verhältnis herzustellen. Kristalleigenschaften, die stark vom Li/Nb-Verhältnis abhängen, sind z. B. der Schmelzpunkt, die Curietemperatur, die Absorptionskante und die Koerzitivfeldstärke.

Sowohl LiNbO_3 als auch LiTaO_3 werden zusätzlich oft mit Fremdionen wie Eisen, Kupfer, Magnesium, Erbium oder Titan dotiert, um die Materialeigenschaften gezielt zu beeinflussen [21]. In der vorliegenden Arbeit werden jedoch ausschließlich nominell reine Proben behandelt.

2.1.2 Wichtige kristallographische Eigenschaften

Reines LiNbO_3 und reines LiTaO_3 sind im sichtbaren Spektralbereich transparent. Beide Materialien sind elektrische Isolatoren. Als Kristalle ohne Inversionszentrum sind LiNbO_3 und LiTaO_3 linear elektrooptisch, piezoelektrisch und pyroelektrisch.

Linearer elektrooptischer Effekt

Unter dem elektrooptischen Effekt versteht man die Änderung des Brechungsindex n bei Anlegen eines elektrischen Feldes E . Für linear elektrooptische Materialien (Pockels-Materialien) und elektrische Felder parallel zur z -Achse des Kristalls lässt sich die Brechungsindexänderung Δn durch die Formel [22]:

$$\Delta n_{o,e} = -\frac{1}{2}n_{o,e}^3 r_{113,333} E \quad (2.1)$$

beschreiben. Die Indizes o und e stehen für ordentlich bzw. außerordentlich polarisiertes Licht (nach dem Englischen: „ordinary“ und „extraordinary“), r_{ijk} ist der lineare elektrooptische Tensor. Sowohl der Brechungsindex als auch die Elemente des elektrooptischen Tensors sind stark von der Lichtwellenlänge λ abhängig. In Tab. 2.1 sind die Werte für n_o und r_{113} in LiNbO_3 für die wichtigsten verwendeten Wellenlängen zusammengefasst. Ähnliche wellenlängenabhängige Messungen für LiTaO_3 sind aus der Literatur nicht bekannt. Stattdessen werden die Werte für $\lambda = 633 \text{ nm}$ verwendet: $n_o = 2.183$ und $r_{113} = 8.4 \text{ pm/V}$ [19].

$\lambda \text{ [nm]}$	n_o	$r_{113} \text{ [pm/V]}$
351	2.5410	17.7
364	2.5080	16.9
455	2.3748	11.8
488	2.3486	11.2
529	2.3248	10.8
633	2.2864	10.0

Tab. 2.1: Werte für den ordentlichen Brechungsindex n_o und das Element r_{113} des linear elektrooptischen Tensors in Abhängigkeit von der Lichtwellenlänge λ für LiNbO_3 (aus [20, 23]).

Ein immer wieder auftretender Spezialfall ist, dass das elektrische Feld durch das Anlegen einer Spannung U in z -Richtung an den Kristall erzeugt wird. Dann erfährt eine ebene Lichtwelle der Wellenlänge λ , die den Kristall entlang der z -Achse durchläuft, eine elektrooptische Phasenänderung $\Delta\varphi$, für die gilt:

$$\frac{\Delta\varphi}{2\pi} = -\frac{r_{113}n_o^3 U}{2\lambda} . \quad (2.2)$$

Piezoelektrischer Effekt

In piezoelektrischen Kristallen führt ein angelegtes elektrisches Feld zu einer mechanischen Verzerrung. Bei einem freien (d. h. nicht von außen eingespannten) Kristall bewirkt ein entlang der z -Achse angelegtes Feld E eine Änderung Δd der Kristalldicke d in z -Richtung gemäß [24]:

$$\frac{\Delta d}{d} = \frac{e_{333}}{C_{333}} E . \quad (2.3)$$

Dabei sind e_{333} und C_{333} die entsprechenden Elemente des piezoelektrischen Tensors und des Steifheitstensors. Für LiNbO_3 gilt: $e_{333} = 1.785 \text{ C/m}^2$ und $C_{333} = 2.357 \times 10^{11} \text{ N/m}^2$ [25].

Pyroelektrischer Effekt

In LiNbO_3 ist der Abstand zwischen den Kationen und den Sauerstoffebenen und damit die spontane Polarisierung P_S temperaturabhängig (siehe Abb. 2.1). Die Änderung ΔP_S der spontanen Polarisierung bei einer Temperaturänderung ΔT wird als pyroelektrischer Effekt bezeichnet. Da sich die Kationen nur entlang der z -Achse bewegen, besitzt der pyroelektrische Tensor ζ ausschließlich die Komponente ζ_3 . Es gilt [20]:

$$\Delta P = \zeta_3 \Delta T \quad (2.4)$$

mit $\zeta_3 = -4 \times 10^{-5} \text{ C K}^{-1}\text{m}^{-2}$ für LiNbO_3 und $\zeta_3 = -2.3 \times 10^{-4} \text{ C K}^{-1}\text{m}^{-2}$ für LiTaO_3 [19]. Das elektrische Dipolmoment eines Ferroelektrikums wird im Gleichgewichtszustand nach außen hin durch sogenannte Kompensationsladungen auf den z -Flächen des Kristalls abgeschirmt. Da eine Temperaturänderung die Spontanpolarisierung beeinflusst, tritt ein Abfließen dieser Kompensationsladungen auf, der sogenannte *Pyrostrom*. Dieser Pyrostrom kann zur Bestimmung der z -Achsen-Orientierung genutzt werden: Beim Abkühlen wird die $+z$ -Fläche des Kristalls positiv geladen [20].

2.2 Ferroelektrische Eigenschaften

2.2.1 Schalten von Domänen in LiNbO_3 und LiTaO_3

Ferroelektrika besitzen eine spontane Polarisierung P_S , die durch ein geeignetes elektrisches Feld umorientiert werden kann [26]. LiNbO_3 - und LiTaO_3 -Kristalle haben bei Raumtemperatur eine spontane Polarisierung entlang der z -Achse, da der Ladungsschwerpunkt der Kationen nicht mit dem Ladungsschwerpunkt der Sauerstoff-Oktaeder übereinstimmt (vgl. Abb. 2.1, $P_S = 0.71 \text{ C/m}^2$ für LiNbO_3 , $P_S = 0.50 \text{ C/m}^2$ für LiTaO_3 [19]). Wird ein ausreichend starkes elektrisches Feld entgegen der z -Achse angelegt, können die Lithium-Ionen durch die Sauerstoffebene in das freie Sauerstoff-Oktaeder wechseln. Dadurch ändert sich das Vorzeichen der spontanen Polarisierung P_S . Gleichzeitig kehrt sich auch die Orientierung der z -Achse um, da diese eben durch die Reihenfolge von Kationen und Leerstellen festgelegt ist. Dieser Vorgang des Umklappens der z -Achse wird als *Umpolen* oder *Polen* bezeichnet. Die minimale elektrische Feldstärke, die zum Umpolen nötig ist, ist das sogenannte *Koerzitivfeld* E_C .

Da beim Umpolen die Spontanpolarisierung des Kristalls geändert wird, müssen (wie beim Pyroeffekt) entsprechende Kompensationsladungen als *Polungsstrom* I_{pol} abfließen. Die gesamte dabei umverteilte Ladungsmenge Q ergibt sich aus der gepolten Fläche A und der Spontanpolarisierung P_{S} zu:

$$Q = 2P_{\text{S}}A \quad . \quad (2.5)$$

Für den Polungsstrom zum Zeitpunkt t folgt daraus:

$$I_{\text{pol}}(t) = 2P_{\text{S}} \frac{dA}{dt} \quad . \quad (2.6)$$

Der Polungsstrom ist also stets proportional zur zeitlichen Änderung der umgepolten Fläche.

Aus Symmetriegründen müssen sich bei einer Umkehrung der z -Achse auch die Vorzeichen aller Eigenschaften ändern, die durch einen 1-, 3-, 5-stufigen, etc. Tensor beschrieben werden. Dazu gehören z. B. die linear elektrooptischen, pyroelektrischen, nichtlinear optischen und piezoelektrischen Tensoren.

Im allgemeinen minimiert ein ferroelektrischer Kristall seine freie Energie durch die Bildung von Regionen gleicher z -Achsen-Orientierung, den sogenannten *ferroelektrischen Domänen*. Die Grenze von zwei Domänen unterschiedlicher Polarisierung wird als *Domänenwand* bezeichnet. Die Breite von Domänenwänden in LiNbO_3 wurde auf unter 100 nm bestimmt, möglicherweise sind sie sogar atomar scharf [27, 28, 29]. Das Umpolen eines Kristalls erfolgt entweder durch das Wachsen bereits existierender oder durch die zufällige Nukleation neuer Domänen. Dabei sind in LiNbO_3 - und in LiTaO_3 - Kristallen, wie oben beschrieben, nur die beiden antiparallelen Orientierungen der z -Achse in sogenannten *180°-Domänen* erlaubt. Spontan gewachsene Domänen haben in LiNbO_3 generell eine hexagonale, in kongruent schmelzendem LiTaO_3 dagegen eine dreieckige Form [30, 31], wobei eine der Domänenwände entlang der kristallographischen y -Richtung verläuft. Kommerziell erworbene LiNbO_3 - und LiTaO_3 -Kristalle sind in ihrem Ursprungszustand (im weiteren als *as-grown* Zustand bezeichnet) normalerweise eindomänig.

2.2.2 Dynamik des Polungsprozesses

Langsame Relaxation des Koerzitivfeldes

Abbildung 2.2 zeigt schematisch die ferroelektrische Hysteresekurve von LiNbO_3 und LiTaO_3 (nach [32]; gemessene Kurven finden sich z. B. in [33, 34]). Die Hysteresekurve ist asymmetrisch, da sich die Koerzitivfeldstärke für die beiden Polungsrichtungen unterscheidet. Es ist Konvention, Umpolungen in die Richtung der ersten Umpolung eines neuen Kristalls als *Vorwärtspolung* und in die andere

Richtung als *Rückwärtspolung* zu bezeichnen. Für die entsprechenden Koerzitivfeldstärken, E_C^V und E_C^R , gilt $|E_C^V| > |E_C^R|$. Weiterhin ist das Koerzitivfeld für die erste Vorwärtspolung eines Kristalls E_C^{V1} signifikant höher als für alle nachfolgenden Vorwärtspolungen (im Folgenden mit $E_C^{V2}, E_C^{V3}, \dots, E_C^{V\infty}$ bezeichnet). Generell gilt, dass die Koerzitivfeldstärke abhängig von der, seit dem letzten Polungsvorgang verstrichenen, Zeit ist [35, 36].

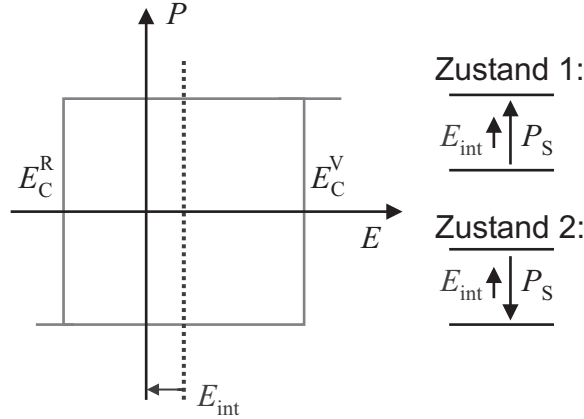


Abb. 2.2: Schematische Hysteresekurve von LiNbO_3 und LiTaO_3 bei Raumtemperatur nach [32]. Aufgetragen ist die Polarisierung P über dem angelegten elektrischen Feld E . Durch Anlegen eines elektrischen Feldes $E > E_C^V$ bzw. $E < E_C^R$ kann der Kristall zwischen den beiden Zuständen der Spontanpolarisierung, P_S und $-P_S$, umgeschaltet werden. LiNbO_3 ist auch ein Dielektrikum aber die entsprechende Änderung der Polarisierung ist hier vernachlässigbar. Der Unterschied zwischen den Koerzitivfeldstärken in Hin- und Rückrichtung, E_C^V und E_C^R , kann als Folge eines internen Feldes E_{int} beschrieben werden, welches das externe Feld E je nach Vorzeichen verstärkt oder abschwächt und somit die Hysteresekurve entlang der E -Achse verschiebt. Zur Verdeutlichung sind rechts die relative Orientierung von internem Feld E_{int} und Spontanpolarisierung P_S vor dem ersten Umpolen (Zustand 1) und nach dem ersten Vorwärtspolen (Zustand 2) skizziert.

Dieses Verhalten lässt sich als Folge der Existenz eines sich langsam verändernden *internen elektrischen Feldes* E_{int} beschreiben [31, 37]. Im ursprünglichen Zustand des Kristalls ist dieses Feld parallel zur Spontanpolarisierung P_S ausgerichtet (siehe Abb. 2.2: Zustand 1). Das zum Umpolen angelegte äußere elektrische Feld wird in diesem Fall vom internen Feld abgeschwächt und muss entsprechend erhöht werden. Nach dem Umpolen der Spontanpolarisierung verharrt das interne Feld in seiner ursprünglichen Orientierung (Abb. 2.2: Zustand 2). Ein zum Umpolen angelegtes externes elektrisches Feld wird jetzt durch das interne Feld verstärkt, die Koerzitivfeldstärke für das Rückwärtspolen ist geringer. Aus der Differenz der Koerzitivfeldstärken von Vor- und Rückwärtspolung lässt sich die interne

Feldstärke E_{int} für die erste Umpolung nach

$$|E_{\text{int}}| = (|E_C^{\text{V1}}| - |E_C^{\text{R1}}|)/2 \quad (2.7)$$

berechnen.

Nach einem Vorwärtspolvorgang wird sich das interne Feld langsam wieder parallel zur Spontanpolarisierung orientieren. Dieser Vorgang ist bei Raumtemperatur auch nach einem Monat noch nicht abgeschlossen. Durch Erwärmen (*Tempern*) der Kristalle auf Temperaturen von über 250 °C lässt sich allerdings eine weitgehende Umorientierung des internen Feldes innerhalb weniger Minuten erreichen [38, 39]. Der genaue Ursprung des internen Feldes ist noch ungeklärt, allerdings konnte gezeigt werden, dass OH^- -Ionen und Punktdefekte auf Grund der Nichtstöchiometrie der Kristalle eine entscheidende Rolle spielen [40].

Der Literaturwert für E_C^{V1} ist ungefähr gleich für kongruent schmelzendes LiNbO_3 und LiTaO_3 und liegt bei ≈ 21 kV/mm [41]. Das Koerzitivfeld nimmt mit besserer Stöchiometrie ab. Für nahezu stöchiometrische Kristalle werden Werte bis hinunter zu 200 V/mm für LiNbO_3 [42] und 1.7 kV/mm für LiTaO_3 [40] angegeben. Die Größe des internen Feldes nach dem ersten Umpolen beträgt typischerweise $E_{\text{int}} = 3.4$ kV/mm für kongruent schmelzendes LiNbO_3 [43] und 5 kV/mm für kongruent schmelzendes LiTaO_3 [39].

Schnelle Relaxation des Koerzitivfeldes

Messungen der Koerzitivfeldstärke in Abhängigkeit von der seit der vorhergehenden Umpolung verstrichenen Zeit zeigen neben der oben beschriebenen langsamen Relaxation des Koerzitivfeldes noch ein zweites, schnelles Relaxationsverhalten mit Zeitkonstanten im Millisekunden- bis Minutenbereich [35, 44]. In den ersten ≈ 20 ms (LiNbO_3) bzw. ≈ 200 ms (LiTaO_3) nach dem Umpolen wird sogar eine negative Koerzitivfeldstärke beobachtet: Wird in dieser Zeit das externe Polungsfeld abgeschaltet, polt sich der Kristall von selbst in die ursprüngliche Polungsrichtung zurück. Dieses sogenannte *Backflipping* zeigt, dass der Mechanismus der schnellen Relaxation für die Stabilisierung der neu gepolten Domänen verantwortlich sein muss. Nach ungefähr 1 s (LiNbO_3) bzw. 10 s (LiTaO_3) ist die Koerzitivfeldstärke wieder auf 75% ihres stationären Wertes angewachsen.

Lichteinfluss auf die Relaxation des Koerzitivfeldes in LiTaO_3

Es ist seit längerem bekannt, dass in LiTaO_3 die eben beschriebene schnelle Relaxation lichtsensitiv ist [18, 35, 45]: Durch Beleuchtung des Kristalls im sichtbaren oder ultravioletten Spektralbereich wird die Relaxation der Koerzitivfeldstärke beschleunigt. Abbildung 2.3 zeigt eine Messung der Koerzitivfeldrelaxation in Abhängigkeit von der Lichtintensität [18].

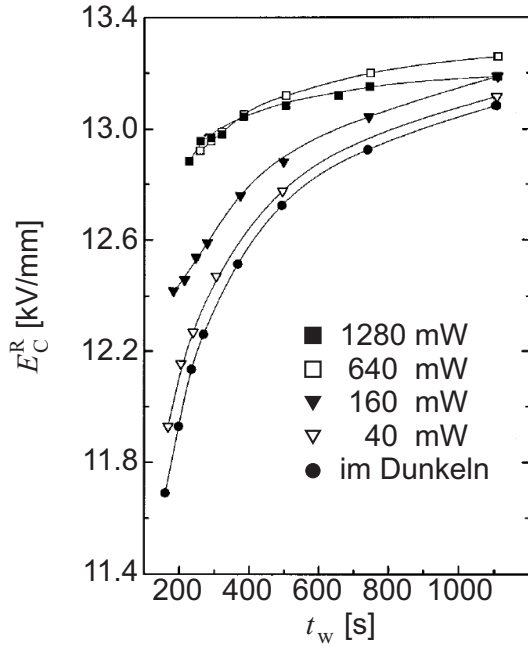


Abb. 2.3: Koerzitivfeldstärke E_C^R von LiTaO_3 über der Wartezeit t_w seit dem letzten Umpolvorgang. Die Kurven entsprechen Messungen im Dunkeln bzw. bei Beleuchtung mit verschiedenen Lichtintensitäten eines Ar^+ -Laser im sichtbaren Spektralbereich (Multiline). Je höher die Intensität der Beleuchtung, um so schneller relaxiert die Koerzitivfeldstärke des Kristalls (Quelle: [18]).

Die physikalischen Gründe für die Lichtsensitivität der schnellen Koerzitivfeldrelaxation sind bislang noch ungeklärt. Vergleichbare Messungen für LiNbO_3 sind aus der Literatur nicht bekannt.

2.3 Erzeugung ferroelektrischer Domänenstrukturen

Im Allgemeinen ist es für Anwendungen notwendig, gezielt bestimmte Domänenstrukturen zu erzeugen. Das typische Beispiel für eine solche Struktur ist periodisch gepoltes Lithiumniobat (PPLN) mit einer Periodenlänge im Mikrometerbereich für Anwendungen in der nichtlinearen Frequenzkonversion oder als Bragg-Gitter. Auf Grund des hohen wissenschaftlichen und kommerziellen Interesses, wurde eine Vielzahl von Techniken zur Herstellung derartiger Strukturen entwickelt, von denen die wichtigsten im Folgenden kurz vorgestellt werden sollen. Im Allgemeinen werden nur sogenannte *z-cut-Kristalle* strukturiert, d. h. Kristalle, die so geschnitten sind, dass die Flächen senkrecht zur z -Achse orientiert sind. Unter der Kristalldicke d versteht man in diesem Fall die Dimension entlang der z -Achse. Je nach Anwendung sollen unterschiedliche Kristalldicken strukturiert werden.

Strukturierte Elektroden

Bei der Standardmethode zur Herstellung von PPLN [46, 47] werden entsprechend dem gewünschten Domänenmuster strukturierte Elektroden an einer oder an bei-

den Seiten des umzupolenden Kristalls angebracht (siehe Abb. 2.4). Dadurch wird der Kristall beim Umpolen einem inhomogenen elektrischen Feld ausgesetzt, welches dann idealerweise direkt in ein Domänenmuster übertragen wird. Mit lithographisch strukturierten Elektroden sind periodisch gepolte Strukturen mit Periodenlängen bis hinunter zu $4\text{ }\mu\text{m}$ in 0.5 mm dickem, kongruent schmelzendem LiNbO_3 hergestellt worden [48]. Sehr kleine Strukturen sind jedoch nur schwer zu realisieren. Das liegt zum einen am hohen Aspektverhältnis, also dem Verhältnis von Kristalldicke d zur Periodenlänge Γ . Zudem polt der Kristall an den Rändern der Elektroden zuerst um, weil dort das elektrische Feld auf Grund der scharfen Kanten erhöht ist. Dadurch wird der umgepolte Bereich im Allgemeinen breiter als die Elektrode [34]. Dennoch sind strukturierte Elektroden die mit Abstand am häufigsten angewandte Methode zur Erzeugung von Domänenstrukturen. Ein wichtiger Vorteil dieser Methode liegt darin, dass sie auf lithographischen Standardverfahren aufsetzt. Sie ist daher auch leicht auf große Kristalle und hohe Stückzahlen erweiterbar.

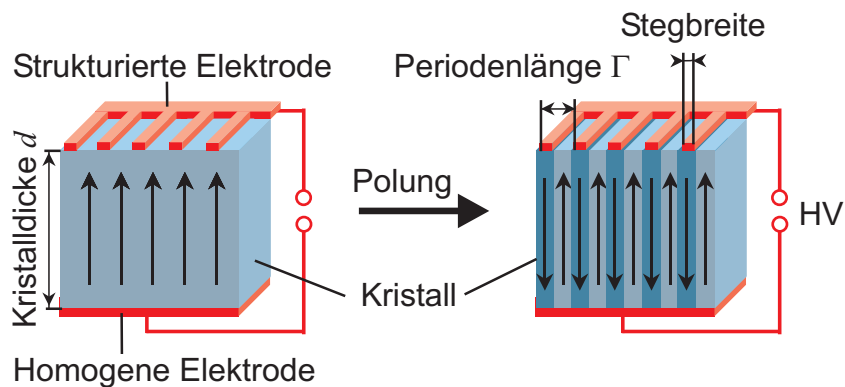


Abb. 2.4: Prinzip des periodischen Polens mit einer strukturierten und einer homogenen (Metall-)Elektrode. Die linke Seite zeigt den Kristall vor, die rechte nach dem Anlegen der Hochspannung (HV). Die Pfeile geben die lokale Orientierung der kristallographischen z -Achse an. Die Breite der gepolten Strukturen wird bei dieser Methode fast immer größer als die Breite der Elektrodenstrukturen (die sogenannte Stegbreite). Sehr oft werden auch Flüssigelektrolyt-Elektroden verwendet, statt der Elektroden wird in diesem Fall eine Isolatorschicht strukturiert.

Serielle Methoden

Bei der Methode des *Elektronenstrahlpolens* wird das Kristallgitter der umzupolenden Probe durch den Beschuss mit schnellen Elektronen (z. B. aus einem Rasterelektronenmikroskop) lokal angeregt [13]. Auf diese Weise entstehen temporäre Öffnungen in den Sauerstoffebenen, so dass bereits ein schwaches elektrisches Feld zum Umlappen der Domäne ausreicht. Dabei können Proben umgepolzt werden,

die um ein Vielfaches dicker sind als die Eindringtiefe der Elektronen. Typische PPLN-Periodenlängen, die sich mit dieser Methode erzeugen lassen, liegen im Bereich einiger Mikrometer. Allerdings ist diese Methode aufgrund des beschränkten Scanbereichs der meisten Elektronenstrahlquellen für die Erzeugung größerer Strukturen ungeeignet.

Eine vergleichsweise neue Idee ist das *Schreiben von Domänen mit dem Rasterkraftmikroskop* [49, 50]. Dazu wird an die Spitze eines Rasterkraftmikroskops eine moderate Spannung von typischerweise einigen Volt angelegt. Durch die starke lokale Erhöhung des elektrischen Feldes im Bereich der Spitze wird es möglich, sehr kleine Strukturen umzupolen. Im Gegenzug begrenzt dieser Effekt allerdings auch die maximale Dicke der Probe. Typische Domänengrößen, die mit dieser Methode erzeugt werden können, liegen bei 500 nm für nur 3 μm dicke stöchiometrische LiTaO_3 -Kristalle bzw. bei bis zu 6 nm für 100 nm dicke Proben [11, 50]. Kleinere Domänen können zwar geschrieben werden, sie sind aber im Allgemeinen nicht stabil und polen mit der Zeit von selbst zurück. Obwohl diese Methode z. B. für die ferroelektrische Datenspeicherung von großem Interesse sein kann, ist sie wegen der Beschränkung auf sehr dünne Proben für die meisten optische Anwendungen nicht geeignet. Zudem limitiert der begrenzte Scanbereich eines Rasterkraftmikroskops die Ausdehnung der auf diese Weise erzeugbaren Strukturen.

Strukturierung mit Licht

Den in Abschnitt 2.2.2 beschriebenen Einfluss von Licht auf die schnelle Relaxation von LiTaO_3 kann man sich zunutze machen, um ein Lichtmuster in ein Domänenmuster zu überführen [18, 36]. Dazu wird ein LiTaO_3 -Kristall mit dem gewünschten Lichtmuster beleuchtet, während er einmal hin- und direkt anschließend wieder zurückgepolt wird. Weil die beleuchteten Bereiche schneller relaxieren, ist in ihnen die Koerzitivfeldstärke direkt nach dem ersten Umpolen höher als in den unbeleuchteten Bereichen. Beim direkt darauf folgenden zweiten Polen werden daher die unbeleuchteten Bereiche zuerst umpolen. Durch geschicktes Wählen der experimentellen Parameter ist es möglich, nur die unbeleuchteten Bereiche zurückzupolen. Da die Beleuchtung das zweite Umpolen erschwert, wird diese Methode als *lichtfrustriertes Polen* bezeichnet. Mit dieser Methode können Domänenmuster mit Periodenlängen von 5 μm in 200 μm dickem LiTaO_3 hergestellt werden [36].

Auch wenn die physikalischen Hintergründe noch nicht verstanden sind, sollte das beschriebene Verfahren direkt auf größere Proben erweiterbar sein. Wenn es sich bei dem Einfluss des Lichts auf den Kristall, wie zu vermuten ist, um einen Volumeneffekt handelt, dürften größere Aspektverhältnisse als mit anderen Methoden realisierbar sein. Über lichtfrustriertes Polen mit LiNbO_3 -Kristallen wurde bisher noch nicht berichtet.

2.4 Visualisierung ferroelektrischer Domänenmuster

Unabhängig von der verwendeten Polungsmethode wird es im Allgemeinen notwendig sein, die erzeugte ferroelektrische Domänenstruktur zu visualisieren, um den Erfolg des Umpolvorgangs zu verifizieren. Da sich unterschiedlich orientierte Domänen in Transparenz und Brechungsindex nicht unterscheiden, ist ein Nachweis durch einfache Lichtmikroskopie nicht möglich. Es wurde jedoch eine Reihe von Methoden zur Sichtbarmachung von ferroelektrischen Domänen entwickelt, von denen die wichtigsten im Folgenden kurz vorgestellt werden sollen.

Domänensensitives Ätzen

Die wegen ihrer leichten Anwendbarkeit und hohen Auflösung am häufigsten verwendete Methode zur Domänenvisualisierung ist das Ätzen des Kristalls in Flusssäure (HF) [16, 51]. Flusssäure ätzt die $-z$ -Seite des Kristalls weitaus schneller als die $+z$ -Seite, so dass das Domänenmuster in ein topographisches Muster umgesetzt wird. Dieses kann dann unter einem Lichtmikroskop oder, für kleinere Domänen, unter einem Rasterkraftmikroskop sichtbar gemacht werden. Der offensichtliche Nachteil ist, dass es sich um ein destruktives Verfahren handelt, welches nicht in-situ anwendbar ist. Geätzte Proben müssen vor einer weiteren Verwendung in der Regel neu poliert werden.

Spannungsdoppelbrechung

Nach dem Umpolen bleiben an den Domänengrenzen mechanischen Spannungen zurück, die zum Auftreten von Spannungsdoppelbrechung an den Domänenwänden führen. Diese lässt sich beispielsweise zwischen zwei gekreuzten Polarisatoren sichtbar machen: Die induzierte Doppelbrechung führt zu einer Drehung der Polarisationsrichtung, und die Domänenwände erscheinen heller, während die Domänen selber dunkel bleiben. Der Vorteil dieses Verfahrens ist seine Einfachheit. Durch einen entsprechenden Aufbau kann es sogar eine Visualisierung des Umpolvorgangs in-situ und in Echtzeit ermöglichen. Allerdings ist der Bereich der Doppelbrechung um eine Domänenwand herum relativ breit, die Auflösung des Verfahrens wird dadurch größenordnungsmäßig auf einige 100 μm begrenzt. Dies ist für viele Anwendungen nicht ausreichend. Mit der Zeit nehmen die inneren Spannungen an einer Domänenwand ab. Dieser Prozess lässt sich, ähnlich wie die Relaxation des Koerzitivfeldes, durch Tempern beschleunigen. So ist es möglich, die Spannungsdoppelbrechung fast vollständig zu unterdrücken. Dies kann z. B. notwendig werden, wenn der Effekt bei der Beobachtung kleiner, geätzter Strukturen unter dem Mikroskop stört.

Elektrooptische Methoden

Wie oben bereits erwähnt, ändert sich beim Umpolen das Vorzeichen des elektrooptischen Tensors:

$$r_{ijk} \xrightarrow{\text{Umpolung}} -r_{ijk} . \quad (2.8)$$

Dieses führt, bei einem angelegten elektrischen Feld E , gemäß Gl. 2.1 zu einem Vorzeichenwechsel der elektrooptischen Brechungsindexänderung. Sendet man einen Lichtstrahl durch den Kristall, so kann diese Brechungsindexänderung als Phasenänderung $\Delta\varphi \rightarrow -\Delta\varphi$ nachgewiesen werden (Gl. 2.2). Man erhält also einen von E abhängigen Phasenkontrast von $2\Delta\varphi$ zwischen Domänen, der zur Visualisierung des Domänenmusters benutzt werden kann. Dazu bringt man beispielsweise die Probe in einen Arm eines Interferometers. Die Domänenwände lassen sich dann als Unstetigkeitsstellen im Interferogramm erkennen [35]. Allerdings beschränkt das Interferometermuster im Allgemeinen sowohl den Kontrast als auch die Auflösung des Domänenbildes.

Alternativ ist es auch möglich, die Probe in ein Phasenkontrastmikroskop zu integrieren [52, 53]. Dadurch kann im Prinzip die volle Auflösung des Mikroskops für die Visualisierung der Domänen ausgenutzt werden. Allerdings ist die Integration in ein vorhandenes Phasenkontrastmikroskop in der Regel sehr aufwändig. Ein Grund sind die für die Visualisierung notwendigen hohen elektrischen Felder, die im Allgemeinen nur mit Hochspannung erzeugt werden können. Zudem setzt die Methode transparente Elektroden zwingend voraus.

Ein großer Vorteil elektrooptischer Methoden ist, dass sie in-situ und in Echtzeit Polungsprozesse sichtbar machen können.

Weitere Methoden

Diverse andere Verfahren zur Visualisierung ferroelektrischer Domänen wurden vorgeschlagen. Realisiert wurden beispielsweise Methoden mittels konfokaler Frequenzverdopplung [54], optischer Nahfeldmikroskopie [55], Elektronenmikroskopie [56], Rasterkraftmikroskopie [28, 57], elektrostatischem Toner [13] oder kohärenter Röntgenstreuung [29]. Gemeinsamer Nachteil all dieser Verfahren ist, dass eine Beobachtung des Domänenmusters während des Umpolens in-situ und in Echtzeit entweder nicht oder nur mit unverhältnismäßig großem Aufwand möglich ist.

3 Experimentelle Methoden

Das vorliegende Kapitel beginnt mit den zu untersuchenden Kristallen. Im Anschluss daran wird der entwickelte Aufbau zum Anlegen hoher elektrischer Felder an die Proben bei gleichzeitiger Beleuchtung vorgestellt. Das Vorgehen beim Umpolen sowie die verwendeten Methoden zur Überwachung des Polungsprozesses und zur Bestimmung des Koerzitivfeldes werden ausführlich beschrieben. Zudem wird die Herstellung periodisch gepolter Kristalle mit strukturierten Elektroden eingeführt. Das anschließende Unterkapitel behandelt das Verfahren zur Beleuchtung der Probe mit einem Lichtmuster. Den Abschluss des Kapitels bilden die Aufbauten zur Beobachtung der Beugungsmuster von durch den Kristall transmittiertem Licht.

3.1 Kristalle

Als Grundmaterial für alle Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit dienen kommerziell erhältliche, undotierte LiNbO_3 - und LiTaO_3 -Wafer. Es werden ausschließlich z -cut-Wafer mit auf optische Qualität polierten z -Flächen benutzt. Untersucht werden kongruent schmelzende LiNbO_3 -Kristalle in den Dicken 0.25 mm, 0.5 mm und 1 mm, sowie kongruent schmelzende LiTaO_3 -Kristalle der Dicke 0.5 mm. Alle Kristalle sind als eindomänig spezifiziert. Hersteller ist die Firma Crystal Technology Inc. in Palo Alto, USA.

Die Kristalle werden geschnitten und ohne weitere Behandlungen im as-grown Zustand verwendet. Standardmäßig werden Kristalle mit den Abmessungen $15 \times 15 \times 0.5 \text{ mm}^3$ benutzt. Abweichungen davon werden bei den entsprechenden Versuchen explizit angegeben.

Die Absorptionskurven der Kristalle im sichtbaren und im nahen ultravioletten Spektralbereich (gemessen mit einem Cary 500 Photospektrometer der Firma Varian) sind in Abb. 3.1 zusammengestellt. Alle Proben sind im Sichtbaren von 400 nm bis 800 nm im Rahmen der Messgenauigkeit vollständig transparent.

3.2 Der Polungsaufbau

3.2.1 Allgemeine Anforderungen

Zum Umpolen der Kristalle wird ein Probenhalter benötigt, mit dem die notwendigen hohen elektrischen Felder ($E > 21 \text{ kV/mm}$) an die Proben angelegt werden können. Dabei dürfen keine elektrischen Überschläge auftreten (zum Vergleich: die Durchschlagfeldstärke in trockener Luft beträgt ca. 3 kV/mm). Um eine möglichst reproduzierbare und „kristallschonende“ Umpolung zu erreichen, soll das elektrische Feld so homogen wie möglich sein. Unebenheiten oder Spitzen,

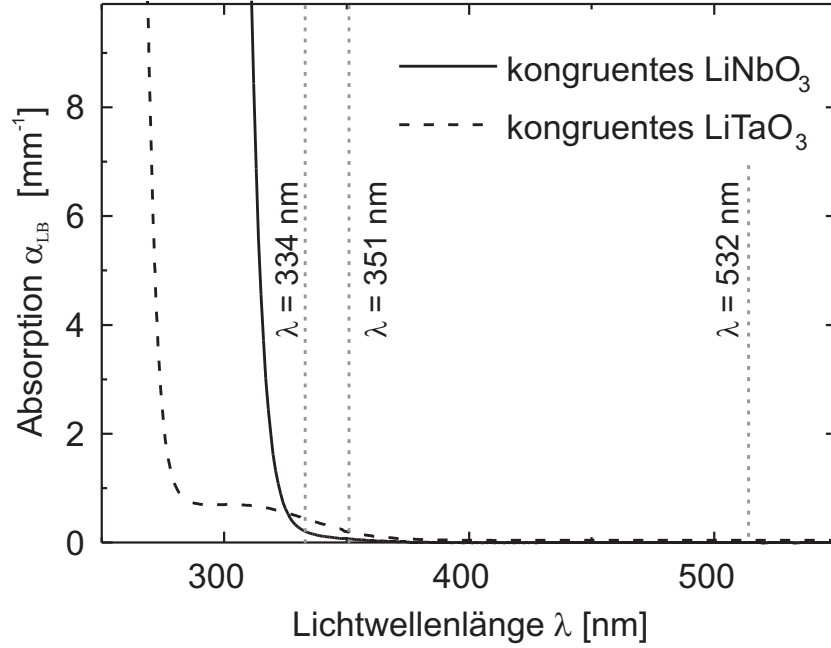


Abb. 3.1: Messung des Lambert-Beer'schen Absorptionskoeffizienten α_{LB} in Abhängigkeit von der Lichtwellenlänge λ für die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Proben. Die vertikalen, gepunkteten Linien markieren die Positionen wichtiger Laserwellenlängen.

die zu lokalen Feldstärkegradienten führen, sind zu vermeiden. Weiterhin muss die Möglichkeit gegeben sein, den Polungsprozess zu überwachen und die Koerzitivfeldstärke zu bestimmen, idealerweise gleich durch mehrere komplementäre Methoden.

Um den Einfluss von Licht auf den Polungsprozess zu untersuchen, ist es zudem notwendig, die Kristalle während des Umpolens beleuchten zu können. Für eine möglichst hohe Flexibilität beim Beleuchten mit Lichtmustern ist die direkte Beleuchtung durch die z -Flächen wünschenswert. Da entlang dieser Flächen aber auch die Elektroden für das Polungsfeld liegen, erfordert das die Verwendung von transparenten Elektroden. Diese müssen eine hohe optische Qualität über einen möglichst großen Transparenzbereich aufweisen und dürfen auch unter längerer, intensiver Beleuchtung nicht degradieren.

Als transparente Elektroden kommen eine Reihe von Varianten in Frage, z. B. sehr dünne, aufgedampfte Metallschichten, aufgesputtertes Indium-Zink-Oxid (Indium Tin Oxide, ITO), oder transparente Flüssigelektroden. Metallbeschichtungen hinreichender Transparenz sind auf Grund ihrer geringen Dicke (einige 10 nm) und schlechten Haftung auf LiNbO₃-Kristallen allerdings sehr empfindlich. Dies erwies sich bei Vorversuchen als großes Problem, da jeder Defekt der Elektroden

die Homogenität des elektrischen Feldes beeinträchtigt. ITO-Schichten sind wesentlich robuster, dafür aber auch in der Herstellung aufwändig und teuer. Aus diesen Gründen wurde in der vorliegenden Arbeit die Entscheidung für einen auf Flüssigelektroden basierenden Halter getroffen.

3.2.2 Der Probenhalter

Eine schematische Darstellung des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Probenhalters zeigt Abb. 3.2. Der Halter besteht aus zwei speziell gefertigten Quarzglasscheiben, zwischen denen der Kristall mit Hilfe von zwei hochspannungsfesten Silikon-O-Ringen gehalten wird. Die Quarzglasscheiben sind mit Bohrungen versehen, durch die das Innere des O-Rings mit der Flüssigelektrode aufgefüllt wird. Der Bereich um die O-Ringe und um die Probe herum kann mit Silikonöl geflutet werden, um Durchschläge am Kristall vorbei zu verhindern. (Bei kürzeren Versuchen ist es einfacher, die O-Ringe vorher in Silikonöl zu tauchen.) Zusätzlich kann um den O-Ring auf der geerdeten Seite noch ein sogenannter Guardring gelegt werden. Dabei handelt es sich um einen geerdeten Metalldraht, der verbleibende Kriechströme um den Kristall herum und am Amperemeter vorbei ableitet.

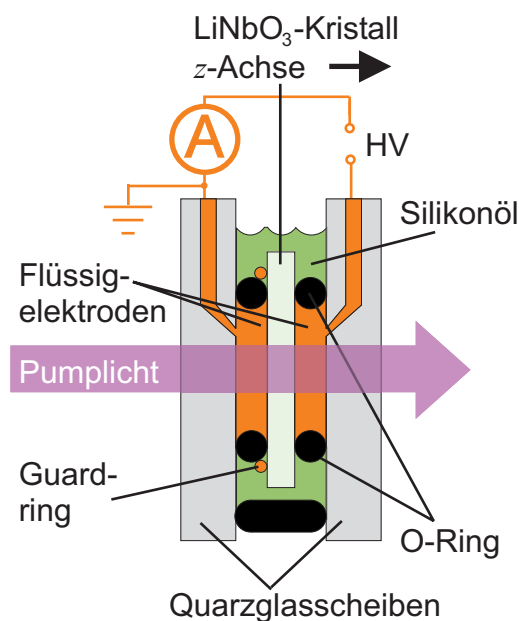


Abb. 3.2: Schematische Darstellung des in den Versuchen verwendeten Kristallhalters; A: Amperemeter; HV: Hochspannungsquelle.

Als Spannungsquelle wird das Netzgerät HCL 140-3500 der Firma FUG benutzt, das Spannungen bis ± 35 kV bei Strömen von maximal 4 mA zur Verfügung stellt. Um die Messgeräte und den Experimentator zu schützen, wird es im Allgemeinen über einen 50 M Ω -Schutzwiderstand an den Probenhalter angeschlossen.

(in der Skizze nicht gezeigt). Alle im Rahmen dieser Arbeit angegebenen Spannungswerte beziehen sich auf die vom Netzgerät gelieferte Nennspannung. Da der Widerstand der Kristalle sehr groß gegenüber dem Schutzwiderstand ist, kann die Abweichung gegenüber der tatsächlich am Kristall anliegenden Spannung im Allgemeinen vernachlässigt werden. Die Strommessung erfolgt über ein Keithley 6514 Elektrometer, welches aufgrund seiner hohen Auflösung im pA-Bereich sowohl die niedrigen pyroelektrischen Ströme als auch die weitaus höheren Polungsströme messen kann. Damit das Gerät nicht beschädigt wird, sollte doch mal ein Durchschlag auftreten, ist es zusätzlich durch einen Überspannungsschutz gesichert (in der Skizze nicht eingezeichnet). Dazu werden ein 17 V-Varistor und eine 90 V Gasentladungslampe parallel zum Elektrometer geschaltet.

Als Flüssigelektrode wird Leitungswasser verwendet. Gegenüber den normalerweise verwendeten gesättigten Salzlösungen hat Leitungswasser den Vorteil, dass auch bei längeren Experimenten kein Salz ausfällt und die optische Qualität der Elektroden beeinträchtigt. Die geringere elektrische Leitfähigkeit von Leitungswasser stellt kein Problem dar, da schon die Leitfähigkeit von destilliertem Wasser die von LiNbO_3 um ca. 8 Größenordnungen übersteigt.

Sowohl Wasser als auch das verwendete Quarzglas sind im sichtbaren und im nahen ultravioletten Spektralbereich vollständig transparent. Dadurch kann die Probe, wie in Abb. 3.2 gezeigt, mit einem Pumplichtstrahl beleuchtet werden. Zusätzlich besteht die Möglichkeit, den gesamten Halter in einen Arm eines Mach-Zehnder-Interferometers zu integrieren, um eine Visualisierung des Polungsprozesses zu ermöglichen. Dieses Interferometer wird in Abschnitt 3.3.2 im Detail behandelt.

3.3 Umpolung und Koerzitivfeldmessung

Im Folgenden sollen die typischen Abläufe und Messmethoden beim Umpolen eines Kristalls kurz beschrieben werden.

Die Vorbereitungen bestehen darin, dass der Kristall gereinigt, in den Halter eingespannt und mit Flüssigelektroden kontaktiert wird. Falls die Orientierung der z -Achse noch nicht bekannt ist, kann sie jetzt anhand des Vorzeichen des pyroelektrischen Stroms bestimmt werden.

Zum Umpolen der Kristalle wird eine lineare Spannungsrampe verwendet. Dafür wird eine Spannung an den Kristall angelegt, die einem elektrischen Feld deutlich unterhalb der Koerzitivfeldstärke entspricht. Die Spannung wird dann kontinuierlich mit konstanter Rate erhöht, bis ein Feld deutlich oberhalb der Koerzitivfeldstärke erreicht ist. Auf diese Weise wird der Kristall im gesamten Bereich der Elektroden umgepol. Die Spannung wird typischerweise einige Sekunden auf dem Maximalwert gehalten und dann direkt auf Null zurückgesetzt. Da die Polarität der Hochspannungsquelle innerhalb weniger Sekunden vertauscht werden kann,

ist es möglich, sofort im Anschluss einen erneuten Polungsvorgang zu beginnen. Dies kann beliebig oft wiederholt werden. Der gesamte Polungsablauf ist computergesteuert, so dass Steigung, Anfangs- und Endpunkte der Rampen, sowie die Wartezeit zwischen Polungsvorgängen mit hoher Präzision und Wiederholgenauigkeit eingestellt werden können. Es ist aber auch möglich den Polungsprozess jederzeit manuell abubrechen, indem die Spannung schlagartig auf 0 kV gesetzt wird. Standardmäßig werden in allen Experimenten Rampen mit der Steigung $\Delta E/\Delta t = 30 \text{ Vs}^{-1}\text{mm}^{-1}$ verwendet.

Um den Polungsprozess zu kontrollieren und zur Bestimmung des Koerzitivfeldes werden zwei Methoden verwendet: die Messung des Polungsstroms und die interferometrische Überwachung des Brechungsindexes.

3.3.1 Messung des Polungsstroms

Die wichtigste Methode zur Überwachung des Polungsprozesses ist die Messung des Polungsstrom I_{pol} mit dem in Abb. 3.2 eingezeichneten Amperemeter. Gemäß Gl. 2.6 ist I_{pol} proportional zur zeitlichen Änderung der gepolten Fläche. Der Polungsstrom liefert also direkt Informationen über die Dynamik des Polungsvorgangs.

Einen typischen Polungsstromverlauf während eines Polungsexperimentes in LiNbO_3 über der Zeit zeigt Abb. 3.3a. Anhand der Stromkurve sieht man, dass der Kristall nicht instantan umpolt. Statt dessen erstreckt sich der Polungsprozess über einen Zeitraum $\Delta t \approx 30 \text{ s}$ und einen E -Feldbereich $\Delta E \approx 900 \text{ V/mm}$. Während dieses Zeitraums sind Teile des Kristalls bereits umgepolt, während der Rest noch in der ursprünglichen z -Achsen-Orientierung verharrt. Bricht man den Polungsprozess während dieser Zeit ab, erhält man multidomänige sogenannte *teilgepolte* Kristalle. Eine weitere Auffälligkeit in der Stromkurve ist das Auftreten von Stromspitzen. Das zeigt, dass die Umpolung nicht gleichförmig sondern in Schüben verläuft. Diese erklären sich zum Teil dadurch, dass sich der Kristall wie ein Kondensator mit einer merklichen Kapazität C verhält. Sobald ein Teil des Kristalls umgepolt wurde, sind die Elektroden mit überschüssigen Kompensationsladungen Q geladen (Gl. 2.5), die nur langsam (Zeitkonstante RC) über den Schutzwiderstand R abfließen können. Diese Kompensationsladungen schirmen das von außen angelegte elektrische Feld E teilweise ab, so dass das effektiv am Kristall anliegende elektrische Feld unterhalb von dem in Abb. 3.3 aufgetragenen liegt. Allerdings zeigen LiNbO_3 und LiTaO_3 auch unter idealen Bedingungen ein schubweises Umpolen [41, 58]. Dieses Verhalten tritt bei allen Ferroelektrika auf und ist als *Barkhausen Effekt* bekannt [59].

Obwohl das Umklappen der Domänen nicht instantan erfolgt, ist es sinnvoll, einen speziellen Wert des angelegten elektrischen Feldes als Koerzitivfeld zu definieren. Für die Messung des Polungsstroms wird willkürlich der Punkt des starken

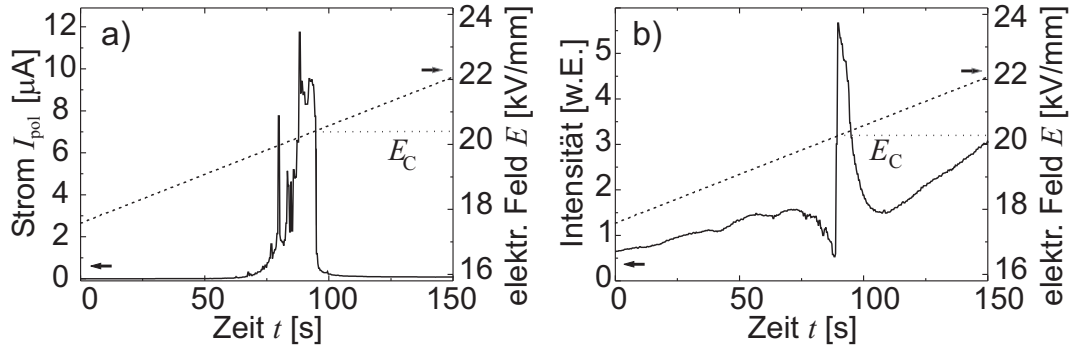


Abb. 3.3: Typische Koerzitivfeldmessungen für das selbe Polungsexperiment in LiNbO₃ ohne Beleuchtung. Aufgetragen sind der Polungsstrom I_{pol} (a, durchgezogene Kurve), die Intensität in einem Punkt des Interferometersignals (b, durchgezogene Kurve, siehe dazu Abschnitt 3.3.2) und das von außen angelegte elektrische Feld E (gestrichelte Kurve) über der Zeit t . Das anhand der jeweiligen Kurve bestimmte Koerzitivfeld E_C ist ebenfalls eingezeichnet.

Stromabfalls gegen Ende der Polung als Koerzitivfeldstärke definiert, da dieser Abfall bei praktisch allen Messungen wohldefiniert und gut reproduzierbar ist. Der Nachteil dieser Definition ist, dass das Koerzitivfeld stark von der verwendeten Spannungsrampe und vom Schutzwiderstand abhängt. Dies ist beim Vergleich von Koerzitivfeldstärken aus unterschiedlichen Messungen zu beachten.

Der Vorteil der Polungsstrommessung ist ihre Einfachheit. Ein Nachteil der Methode ist, dass sie nur über die Fläche der Elektroden gemittelte Ergebnisse liefert. Aussagen über kleinere Bereiche des Kristalls können mit ihr genauso wenig getroffen werden wie über statische Domänenmuster. Aus diesen Gründen ist es sinnvoll, sie mit einer komplementären Messmethode zu kombinieren.

3.3.2 Interferometrische Beobachtung der Umpolung

Wie in Abschnitt 2.4 beschrieben, kann aus dem Vorzeichen der elektrooptischen Brechungsindexänderung Δn auf die Orientierung der z -Achse geschlossen werden. Diese Brechungsindexänderungen werden mit einem Interferometer in Intensitätsänderungen umgewandelt und zur Visualisierung der Domänen verwendet. Den schematischen Aufbau zur interferometrischen Beobachtung der Probe zeigt Abb. 3.4.

Der Probenhalter aus Abschnitt 3.2.2 wird unverändert übernommen und in einen Arm eines Mach-Zehnder-Interferometers integriert. Das zum Umpolen angelegte elektrische Feld erzeugt dabei gleichzeitig die benötigten Brechungsindexänderungen zur Visualisierung der Domänen. Die Intensität des Interferometer-Testlichts (Wellenlänge $\lambda = 633$ nm) wird so gering wie möglich

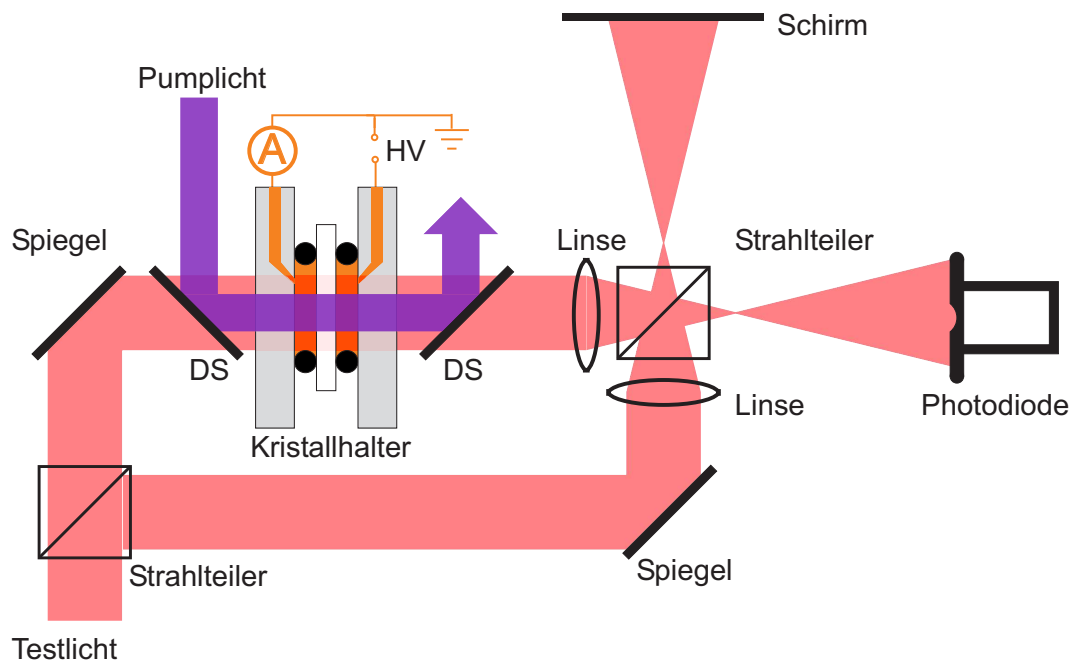


Abb. 3.4: Schematische Darstellung des in ein Mach-Zehnder-Interferometer integrierten Kristallhalters. DS: dielektrischer Spiegel.

gehalten, um den Polungsprozess nicht zu beeinflussen. Mit Hilfe von zwei Lin-
sen wird das Interferenzbild des Kristalls vergrößert und auf einen Schirm und
auf eine oder mehrere Photodioden in der Schirmebene abgebildet. Der Schirm
dient dazu, das gesamte Interferenzbild des Kristalls zu beobachten. Vor jeder
Photodiode ist eine Lochblende angebracht, damit nur das Interferogramm eines
möglichst kleinen, frei wählbaren Bereiches des Kristalls detektiert wird.

Abbildung 3.3b zeigt eine typische Photodioden-Messung der Intensität über der
Zeit in einem Punkt des Interferogramms. Zusätzlich eingetragen ist das von au-
ßen angelegte elektrische Feld E . Es handelt sich dabei um den selben Polungs-
vorgang wie in Abb. 3.3a. Gemäß Gl. 2.2 ändert sich die Phase einer den Kristall
durchlaufenden Lichtwelle linear mit dem elektrischen Feld. Das führt dazu, dass
die Strahlen aus den beiden Interferometerarmen mit steigendem E abwechselnd
konstruktiv oder destruktiv interferieren und die Intensität des Interferometersig-
nals eine Sinusfunktion durchläuft. Diese graduelle Intensitätsänderung wird im
Moment des Umklappens des betreffenden Kristallbereichs durch eine Unstetig-
keitsstelle unterbrochen. Wenn der durch die Photodiode beobachtete Bereich des
Kristalls klein genug gewählt wurde, polt er praktisch instantan. Die Koerzitiv-
feldstärke des betreffenden Bereiches kann dann wie in Abb. 3.3b direkt aus der
Kurve abgelesen werden. Ansonsten kann es sein, dass der beobachtete Bereich
graduell oder in mehreren Schüben umpolt. In diesem Fall erhält man Kurven

in denen entweder überhaupt keine deutliche Unstetigkeit erkennbar ist oder die mehr als eine Unstetigkeitsstelle aufweisen. In einem solchen Fall wird der betreffenden Messung keine Koerzitivfeldstärke zugeordnet.

Vergleicht man die Messung aus Abb. 3.3b mit der Messung des Polungsstroms in Abb. 3.3a, so fällt auf, dass beide Methoden unterschiedliche Koerzitivfeldstärken liefern, obwohl es sich um den selben Polungsprozess handelt. Dies ist ein systematisches Problem: Der Polungsstrom integriert über die gesamte Elektrodenfläche, und das Koerzitivfeld wird aus dem elektrischen Feld am Ende der Umpolung bestimmt. Die so ermittelten Werte sind generell höher, als die mit dem Interferometer bestimmten, welches das Koerzitivfeld in einem Punkt liefert.

Mit dem Interferometer kann man Domänen auch direkt visualisieren. Abbildung 3.5 zeigt drei typische Bilder eines LiNbO_3 -Kristalls, wie sie während des Umpolens auf dem in Abb. 3.4 eingezeichneten Schirm zu sehen sind. Größere Domänen sind im Interferenzmuster sehr gut erkennbar. Kleinere Domänen sieht man dagegen nur wenn der Kontrast sehr hoch ist, z. B. innerhalb des dunklen Interferenzrings. Das dynamische Verhalten der Domänen während des Umpolens lässt sich allerdings gut in Echtzeit auf dem Schirm beobachten. So sieht man wie die Domänen durch Wandbewegung wachsen und zu größeren Domänen verschmelzen. Man beobachtet auch, dass das Domänenwachstum nicht homogen erfolgt, sondern dass sich einzelne Wände oftmals in Schüben bewegen. Z. B. erkennt man an den Beispielbildern, dass sich einige Domänenwände stark bewegt haben, während andere in ihrer Lage unverändert bleiben. (Dies ist in Echtzeit auf dem Schirm natürlich sehr viel besser zu erkennen.) Die inhomogenen Wandbewegungen sieht man teilweise auch als Spitzen im Polungsstrom (vgl. Abschnitt 3.3.1).

3.3.3 Periodisches Polen mit strukturierten Elektroden

Für spätere Untersuchungen werden einige periodisch gepolte Lithiumniobat-Kristalle (PPLN) mit der Methode mit strukturierten Elektroden (Abschnitt 2.3) hergestellt. Dazu wird ein Fotolack-Linienmuster lithographisch auf eine Seite der Probe aufgebracht.* Dabei verläuft der Gittervektor des Linienmusters entlang der x -Achse des Kristalls. Die Periodenlänge Γ wird zwischen 8 und 30 μm und die Stegbreite der lithographischen Strukturen zwischen 1 und 11 μm variiert. Als Elektroden, dienen gesättigte NaCl-Lösungen, um eine möglichst hohe elektrische Leitfähigkeit zu erreichen. Durch die Fotolack-Streifen wird das elektrische Feld in der Probe moduliert. Der Kristall wird mit Spannungspulsen konstanter Amplitude umgepol.

*Diese Experimente wie auch ein Großteil der weiteren Messungen an PPLN-Kristallen wurden während eines Forschungsaufenthaltes in der Gruppe von Prof. Fejer an der Stanford University durchgeführt.

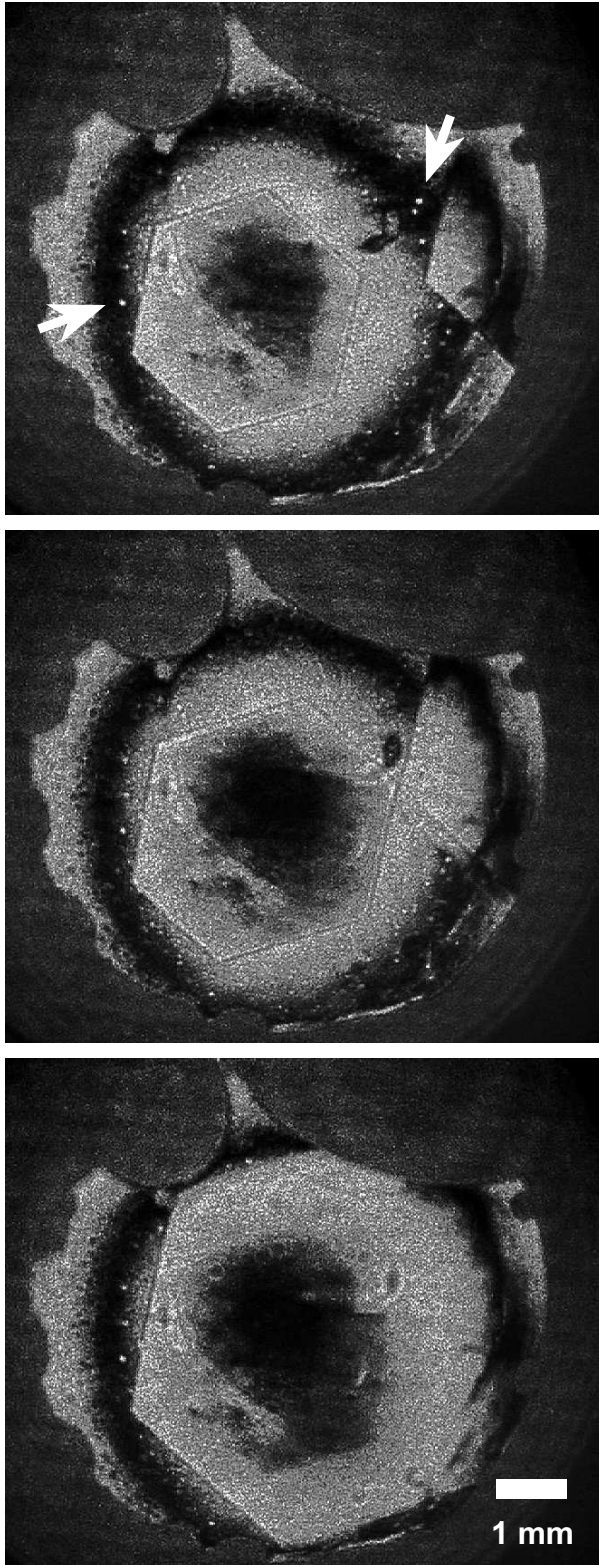


Abb. 3.5: Typische Interferometermuster eines LiNbO_3 -Kristalls während des Umpolens, aufgenommen im Abstand von 1.5 s mit dem Aufbau aus Abb. 3.4. Die runde äußere Begrenzung ist der undurchsichtige O-Ring. Die Abweichungen von der Kreisform kommen von Luftblasen, die sich im Laufe des Experiments am O-Ring abgesetzt haben, sowie von den Einfüllöffnungen für die Flüssig-elektrode. Das Interferenzmuster wird von einem großen Interferenzring dominiert. Durch die Unstetigkeitsstellen im Interferenzmuster erkennt man gut eine große hexagonale Domäne im Zentrum sowie kleinere Domänen am rechten und am oberen Rand. Die hellen Punkte im dunklen Interferenzring (Pfeile) sind ebenfalls kleine Domänen, die sogenannten Polungskeime. Der Maßstab gibt die Originalgröße des Domänenmusters an.

3.4 Beleuchtung mit einem Lichtmuster

Im Rahmen dieser Arbeit soll geklärt werden, ob Licht das Polungsverhalten von LiNbO_3 beeinflussen kann. Ziel soll es sein, ein Lichtmuster direkt in ein Domänenmuster zu übertragen. Als Lichtquelle steht ein Ar^+ -Laser des Typs Innova Sabre der Firma Coherent mit einer maximalen Leistung (im Multiline-Betrieb) von 25 W im sichtbaren und von 7 W im ultravioletten Spektralbereich zur Verfügung. Wegen der Bedeutung von periodisch gepoltem LiNbO_3 soll der Kristall mit einem Streifenmuster beleuchtet werden. Das dabei zu verwendende Lichtmuster soll eine hohe Tiefenschärfe und einen starken Kontrast aufweisen, sowie über Stunden stabil sein. Es soll der ganze Spektral- und Leistungsbereich des Lasers (inklusive Multiline) bei möglichst geringen Verlusten ausgeschöpft werden. Zudem wäre es wünschenswert, die Periodenlänge des Streifenmusters in einem möglichst großen Bereich variieren zu können.

Zur Erzeugung eines Streifenmusters bieten sich generell mehrere Verfahren an, z. B. über eine Phasenmaske, mittels Zweistrahl-Interferenz oder über eine Intensitätsmaske. Jede dieser Methoden hat ihre Vor- und Nachteile: Phasenmasken sind nahezu verlustfrei und können sehr stabile Lichtmuster mit hohem Kontrast bei beliebigen Tastverhältnissen erzeugen. (Das *Tastverhältnis* κ , engl. *duty cycle*, eines Streifenmusters gibt das Verhältnis von Streifenbreite zum Abstand zwischen den Streifen an. Z. B. bedeutet ein Tastverhältnis von $\kappa = 0.5$ bei einem Lichtmuster dass die hellen und dunklen Streifen gleich breit sind.) Phasenmasken sind aber auch sehr teuer und wenig flexibel. Für erste Versuche sind sie daher nicht interessant. Bei einem Zweistrahl-Interferenzaufbau kann über den Winkel zwischen den Strahlen die Periodenlänge des entstehenden Lichtmusters nahezu frei gewählt werden. Ein Interferenzmuster bietet zudem eine nahezu unbegrenzte Tiefenschärfe. Allerdings bietet ein Zweistrahl-Interferenzaufbau nur eine sinusförmige Modulation des Lichtmusters. Für länger dauernde Experimente benötigt ein Interferenzaufbau zudem eine aktive Phasen-Stabilisierung. Außerdem verlangen größere Periodenlängen sehr kleine Winkel, die im Aufbau nur schwer oder mit deutlichem Leistungsverlust zu realisieren sind. Sowohl die Phasenmaske als auch das Interferenzmuster sind stark wellenlängenabhängig, so dass eine Beleuchtung im Multiline-Betrieb des Lasers nicht möglich ist.

Auf Grund des einfachen Aufbaus und der hohen Stabilität wird das Lichtmuster für die hier vorgestellten Untersuchungen mit einer binären Intensitätsmaske erzeugt. Binär bedeutet in diesem Zusammenhang, dass die Maske ein Stufenprofil aufweist, welches Licht entweder vollständig durchlässt oder abblockt. Ein Intensitätsverlust durch die Intensitätsmaske von ca. 50% bei einem Tastverhältnis von 0.5 erscheint vertretbar. Allerdings ergeben sich gerade im besonders interessanten Bereich kleiner Periodenlängen Probleme. Die Masken müssen trotz der feinen Strukturen intensives UV-Licht über längere Zeit ohne Degradierung aushalten. Zudem soll die Maske nicht direkt (z. B. lithographisch) auf den Kristall

aufgebracht werden, da sonst schon eine geringe Lichtabsorption durch die Maske den Kristall inhomogen aufheizen würde.

Eine Möglichkeit, die gewünschten kleinen Strukturen zu erzeugen, ist es, die Maske nicht auf die Probe abzubilden, sondern das Beugungsmuster der Maske als Lichtmuster zu nutzen. Abbildung 3.6 zeigt den prinzipiellen Aufbau. Der Kristall wird mit dem Laserstrahl durch die binäre Maske beleuchtet. Dabei wird bewusst ein Abstand zwischen Maske und Probe gelassen, um am Ort der Probe ein ausgeprägtes Beugungsmuster zu erhalten. In dieser Arbeit wird eine binäre Metallmaske mit einer Periodenlänge von $500\text{ }\mu\text{m}$ im Abstand von $\approx 4\text{ cm}$ vom Kristall genutzt. Abbildung 3.7 zeigt das dazugehörige Lichtmuster direkt hinter der Maske sowie das Fresnel-Beugungsmuster am Ort der Probe. Das Beugungsmuster zeigt zwei prinzipielle Charakteristika: Eine grobe Struktur mit sehr kontrastreichen Doppellinien im Abstand von ca. $500\text{ }\mu\text{m}$ und darunter eine zweite, feinere Struktur. Diese ist quasi-periodisch mit einer Periodizität von ungefähr $8\text{ }\mu\text{m}$. Auch wenn es dieses Lichtmuster natürlich nicht erlaubt, nutzbare PPLN-Strukturen zu erzeugen, ist es für erste Versuche gut geeignet, da es mit der feinen und der groben Struktur einen weiten Bereich von Strukturgrößen abdeckt. Für darüber hinausgehende Experimente wird man allerdings auf eine andere Methode der Lichtmustererzeugung zurückgreifen müssen.

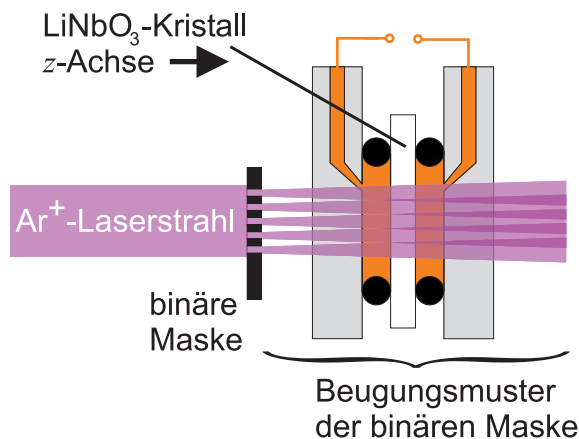


Abb. 3.6: Schematische Darstellung der Beleuchtung mit einer binären Maske. Das Lichtmuster der Maske wird bewusst nicht abgebildet. Statt dessen wird das entstehende Beugungsmuster benutzt, um kleinere Strukturen zu erhalten.

3.5 Beobachtung der Beugungsmuster

Neben der Beeinflussung des Koerzitivfeldes soll das Licht auch dazu dienen, mehr über den Polungsprozesses selbst zu lernen. Es soll untersucht werden, wie Licht verschiedener Wellenlängen mit ferroelektrischen Domänen wechselwirkt, mit oder ohne angelegtem elektrischen Feld. Wichtigste Informationsquelle sind dabei die hinter einem teilweise umgepolten Kristall entstehenden Beugungsmuster.

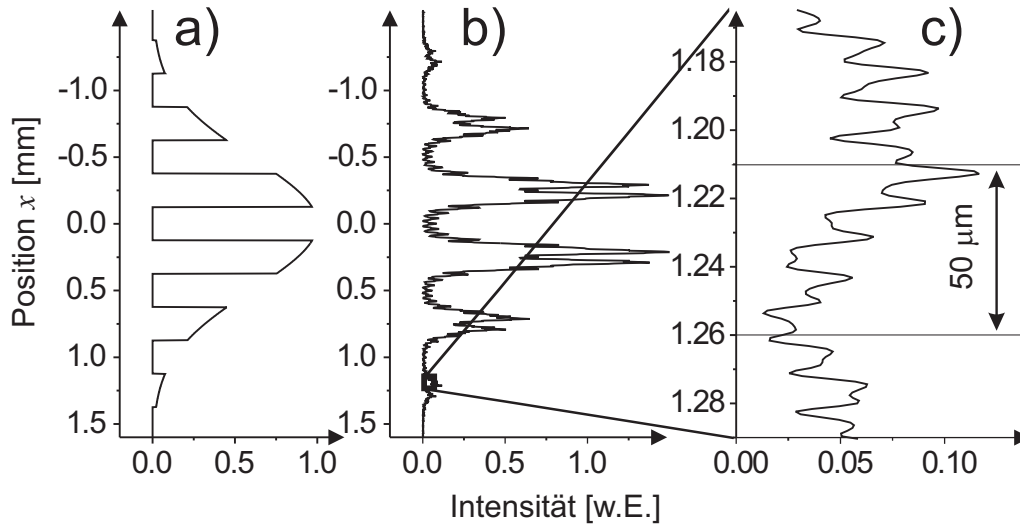


Abb. 3.7: Berechnete Intensitätsverteilung des Laserstrahls a) direkt hinter der binären Maske, b) am Ort der Probe ca. 4 cm hinter der Maske. c) zeigt einen vergrößerten Ausschnitt aus b): Eine modulierte Lichtintensität mit einer Periodenlänge $\approx 8 \mu\text{m}$ ist erkennbar. Das Fresnel-Beugungsmuster wurde mit Gl. A.2 für eine Lichtwellenlänge von $\lambda = 334 \text{ nm}$ berechnet. Als Brechungsindex der Flüssigelektroden wird $n = 1.343$ angenommen [60].

Eine schematische Darstellung des verwendeten Versuchsaufbaus zeigt Abb. 3.8. Der in Abschnitt 3.2.2 beschriebenen Kristallhalter wird unverändert übernommen. Die teilweise umgepolten Proben werden entlang der z -Richtung mit einer ebenen Welle beleuchtet. Dazu wird die TEM-00-Mode eines Ar^+ -Lasers verwendet, die gegebenenfalls aufgeweitet und raumfrequenzgefiltert wird. Durch Wechselwirkung mit dem Kristall werden sich im Allgemeinen Phase und Intensität des eingestrahlt Lichtes inhomogen über die beleuchtete Fläche ändern. Der Lichtstrahl ist beim Verlassen der Probe also keine ebene Welle mehr, und es tritt Beugung auf. Beobachtet werden die beiden Extremfälle der Beugung: das Nahfeldbeugungsmuster direkt hinter dem Kristall und das Fernfeld-Beugungsmuster. Nahfeld und Fernfeld sind dabei wie in Abschnitt A.1 als Bereich der Fresnel- und als Bereich der Fraunhofer-Beugung definiert. Sie dürfen nicht mit der in der Nahfeldoptik verwendeten Definition von Nah- und Fernfeld als den evaneszenten und den propagierenden Bereich einer Strahlungsquelle verwechselt werden.

Das Fernfeldbeugungsmuster erhält man, indem man den transmittierten Strahl direkt auf einen Fluoreszenzschirm (z. B. aus Papier) gibt (Abb. 3.8a). Dabei muss der Abstand a zwischen Kristall und Schirm ausreichend groß gewählt werden, um wirklich das Fernfeld zu beobachten. Typische Abstände im Labor lie-

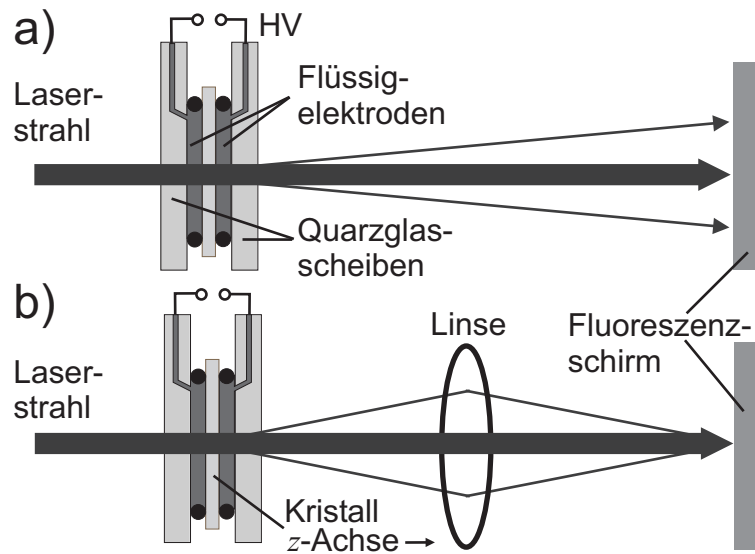


Abb. 3.8: Schematische Darstellung des Aufbaus zur Messung der Beugungsmuster des durch den Kristall transmittierten Lichts: a) ohne Linse im Fernfeld b) mit Linse im Nahfeld. HV: Hochspannung.

gen zwischen 75 und 150 cm. In vielen Fällen erweist es sich als vorteilhaft, den transmittierten Hauptstrahl abzublenden, damit schwache Beugungsmuster besser beobachtet werden können. Dazu wird der Hauptstrahl einfach durch eine kreisförmige Aussparung im Fluoreszenzschirm geführt.

Das Nahfeldbeugungsmuster erhält man, indem man den Schirm möglichst nah an den Kristall bringt. Da der Abstand zwischen Kristall und Schirm jedoch nicht beliebig verringert werden kann, benutzen wir eine Linse, um die Rückseite des Kristalls auf dem fluoreszierenden Schirm vergrößert abzubilden (Abb. 3.8b). Das Nahfeldmuster kann auch direkt auf den CCD-Chip einer Kamera abgebildet werden. Dadurch lässt sich das Beugungsmuster mit einer deutlich höheren Auflösung aufnehmen.

4 Experimentelle Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse zur Wechselwirkung von Licht mit ferroelektrischen Domänen präsentiert. Dabei wird zuerst das allgemeine Verhalten der Proben beim Umpolen charakterisiert. Danach werden die Auswirkungen von Beleuchtung auf das Polungsverhalten der Kristalle untersucht. Der letzte Teil beschäftigt sich mit dem Einfluss von ferroelektrischen Domänen auf transmittiertes, kohärentes Licht.

Zur Nomenklatur: Ein *Polungsprozess* oder ein *Polungsvorgang* ist eine einzelne Umpolung, entweder in Vorwärts- oder in Rückwärtsrichtung, vollständig oder teilweise. Ein *Polungszyklus* besteht aus zwei aufeinander folgenden vollständigen Polungsvorgängen. Die z -Achse des Kristalls hat nach einem Polungszyklus also wieder die ursprüngliche Orientierung.

4.1 Charakterisierung des Polungsverhaltens der verwendeten Proben ohne Licht

Um den Einfluss von Licht auf den ferroelektrischen Polungsprozess untersuchen zu können, ist es zunächst notwendig, das Polungsverhalten der Kristalle ohne Beleuchtung zu verstehen. Ergebnisse dazu werden im Folgenden vorgestellt.

4.1.1 Messung der Koerzitivfeldstärke und der Polungsqualität

Die wichtigste Kenngröße beim Umpolen von ferroelektrischen Domänen ist das, zum Umklappen der z -Achse benötigte, Koerzitivfeld E_C . Am Beispiel von LiNbO_3 zeigt Abb. 4.1, wie sich die Koerzitivfelder für das Vorwärts- und Rückwärtspolen, E_C^V und E_C^R , bei sukzessiven Polungsprozessen verändern. Dabei sind sowohl die über den Polungsstrom (siehe Abschnitt 3.3.1) als auch die interferometrisch ermittelten Koerzitivfeldstärken aufgetragen (Abschnitt 3.3.2). Zwischen aufeinander folgenden Polungsprozessen liegt jeweils eine Pause von ca. 20 min, um den Einfluss der schnellen Koerzitivfeldrelaxation (Abschnitt 2.2.2) zu minimieren. Als erstes fällt die bereits in Abschnitt 3.3.2 beschriebene systematische Abweichung ins Auge, die dafür sorgt, dass die anhand des Polungsstroms bestimmten Koerzitivfelder über den interferometrisch gemessenen liegen. Man sieht auch, dass das Koerzitivfeld E_C^{V1} für die erste Vorwärtspolung des Kristalls jeweils deutlich erhöht ist. Die folgenden Vorwärtspolvorgänge ergeben dagegen relativ gleich bleibende Werte für das Koerzitivfeld. Beim Rückwärtspolen zeigt sich ein ähnliches Bild: Die Koerzitivfeldstärke E_C^{R1} für das erste Rückwärtspolen, weist eine merkliche Abweichung auf, ab dem zweiten Rückwärtspolen sind die Werte dann aber weitgehend konstant. Die aus der obigen Messung ermittelten, typischen Werte für das Koerzi-

tivfeld sind in Tab. 4.1 zusammengestellt. Für LiTaO_3 wird das Koerzitivfeld nur über den Polungsstrom bestimmt. Entsprechende Koerzitivfeldwerte sind ebenfalls in Tabelle 4.1 angegeben. Die Fehlerschranken geben die Standardabweichung von Messwerten der gleichen Probe an. Von Probe zu Probe und von Wafer zu Wafer gibt es zusätzliche Abweichungen, die aber nicht untersucht werden.

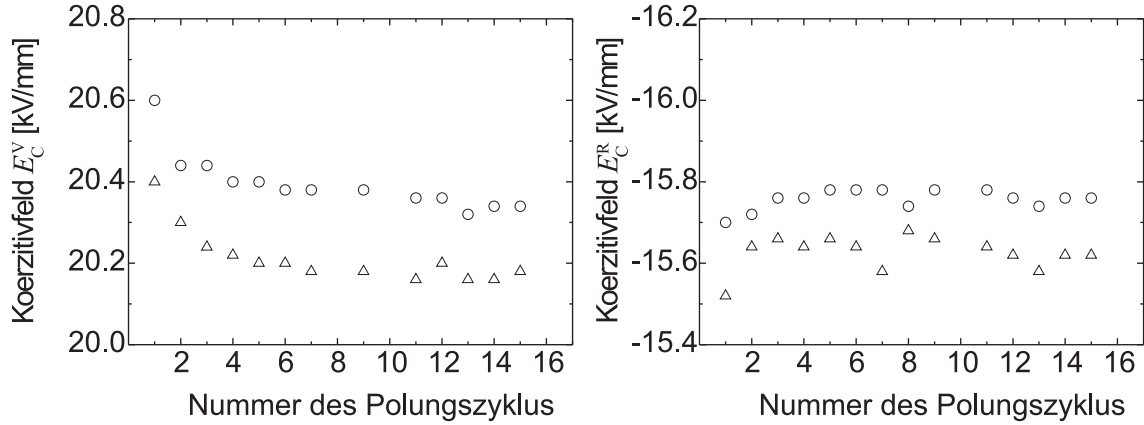


Abb. 4.1: Koerzitivfeldstärke für die Vorwärts- (links) und für die Rückwärtsrichtung (rechts), E_C^V und E_C^R , gemessen mit Hilfe des Polungsstroms (Kreise) und mit dem Interferometer (Dreiecke), aufgetragen über der Nummer des Polungszyklus für kongruent schmelzendes LiNbO_3 .

Probe (Messmethode)	E_C^{V1} [kV/mm]	$E_C^{V\infty}$ [kV/mm]	$E_C^{R\infty}$ [kV/mm]
LiNbO_3 (Polungsstrom)	20.6	(20.38 ± 0.04)	$-(15.76 \pm 0.02)$
LiNbO_3 (Interferometer)	20.4	(20.20 ± 0.04)	$-(15.63 \pm 0.03)$
LiTaO_3 (Polungsstrom)	20.8	≈ 19.6	≈ -12.4

Tab. 4.1: Typische Koerzitivfelder für LiNbO_3 - und LiTaO_3 -Proben. Eingetragen sind das Koerzitivfeld für die erste Vorwärtspolung E_C^{V1} , für alle weiteren Polungen in Vorwärtsrichtung $E_C^{V\infty}$ und für das Rückwärtspolen (exklusive der ersten Rückwärtspolung) $E_C^{R\infty}$. Die jeweils benutzte Messmethode ist angegeben.

Die optische Qualität der Kristalle nimmt durch viele Polungsvorgänge leicht ab. Abbildung 4.2 zeigt einen LiNbO_3 -Kristall nach einem und nach über 100 Polungsvorgängen unter dem Polarisationsmikroskop. Nach dem ersten Umpolen sieht man nur sehr geringe innere Spannungen, der umgepolte Bereich ist sehr homogen, auch wenn man einige kleine Punktdefekte erkennen kann. Die Grenze des umgepolten Bereichs ist sehr scharf. Nach mehrmaligen Polungsprozessen zeigt sich eine deutliche Zunahme der Spannungsdoppelbrechung, insbesondere

an der Grenze der Flüssigelektrode, aber auch unterhalb des O-Rings. Die Homogenität des umgepolten Bereichs hat ebenfalls abgenommen. Größere lokale Defekte sind deutlich zu sehen. Zusätzlich erkennt man eine Zunahme an kleinen Inhomogenitäten. Das Koerzitivfeld hat sich dagegen nicht signifikant geändert.

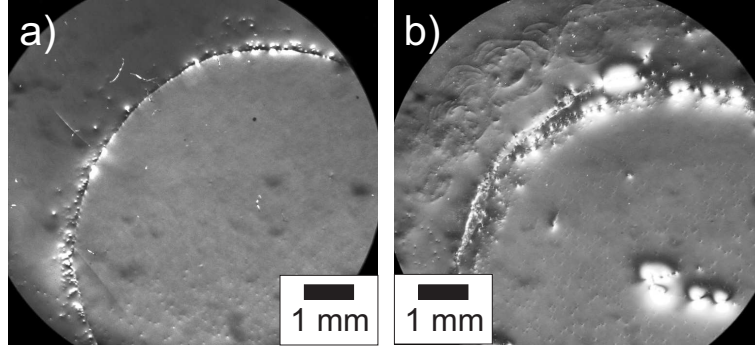


Abb. 4.2: Polarisationsmikroskopaufnahme eines LiNbO_3 -Kristalls nach dem ersten Umpolen (a) und nach über 100 Polungsvorgängen (b). Rechts unten in den Bildern ist der Bereich der Flüssigelektroden, der Kreisbogen ist die Grenze zur Auflagefläche des O-Rings. Die schwarzen Bereiche in den Ecken resultieren aus dem begrenzten Aufnahmegebiet des Mikroskops.

4.1.2 Messung der schnellen Relaxation des Koerzitivfeldes

LiNbO_3 zeigt, wie in Abschnitt 2.2.2 beschrieben, eine schnelle Relaxation des Koerzitivfeldes unmittelbar nach einem Polungsvorgang. Diese soll im Folgenden charakterisiert werden.

Die zu untersuchende Probe wird zuerst *eingepolt*, d. h. sie wird mehrfach hin- und hergepolt, damit die abweichenden Koerzitivfelder der ersten Polungen die Messungen nicht verfälschen. Für die eigentliche Messung wird der Kristall einmal hin- und direkt danach wieder zurückgepolt (siehe das Schema in Abb. 4.3). Um die Zeit zwischen den beiden Polungsvorgängen möglichst kurz zu halten wird die erste Polungsrampe sofort nach Abklingen des Polungsstroms abgebrochen und die zweite Rampe beginnt bereits bei einem Feld knapp unterhalb der Koerzitivfeldstärke. Das Koerzitivfeld E_C für den zweiten Polungsvorgang wird nach der Polungsstrommethode bestimmt. Nach dem Polungszyklus wird ca. 20 min ohne Spannung gewartet, damit das Koerzitivfeld wieder komplett relaxieren kann.

Diese Messung liefert das Koerzitivfeld E_C für eine bestimmte Wartezeit t_w seit dem letzte Polungsvorgang. Als t_w wird die Gesamtzeit zwischen den beiden Koerzitivfeldmessungen genommen (wie oben beschrieben dient der Stromabfall gegen Ende der Polung als Referenz für den Polungszeitpunkt, vgl. Abb. 4.3). Die gemessenen Werte $E_C(t_w)$ für die Vorwärts- und die Rückwärtspolung sind

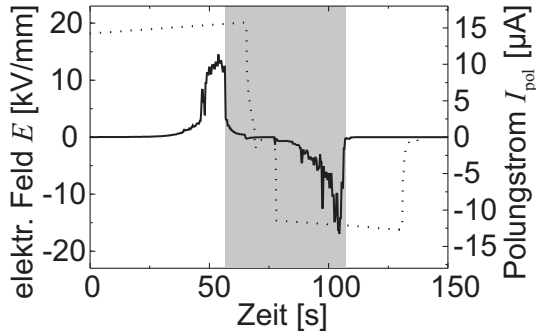


Abb. 4.3: Typischer Polungszyklus zur Messung der schnellen Relaxation des Koerzitivfeldes. Aufgetragen sind das angelegte elektrische Feld E (gepunktete Linie) und der gemessene Polungsstrom I_{pol} (durchgezogene Linie) über der Zeit. Der graue Balken markiert die Wartezeit t_w .

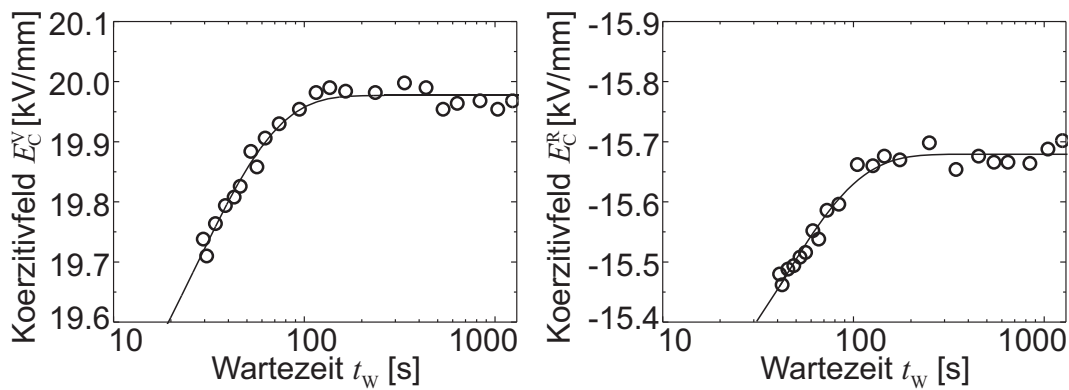


Abb. 4.4: Koerzitivfeldstärke für die Vorwärts- (links) und für die Rückrichtung (rechts), E_C^V und E_C^R , in Abhängigkeit von der Wartezeit t_w seit dem vorangegangenen Polungsvorgang für kongruent schmelzendes LiNbO_3 . Die durchgezogenen Linien sind exponentielle Anpassungen an die Messwerte (siehe Abschnitt 5.1)

in Abb. 4.4 aufgetragen. Ein Relaxationsverhalten ist deutlich erkennbar. Die kürzeste auf diese Weise messbare Wartezeit t_w ist durch die benötigte Zeit zum Zeit zum Hoch- und Runterfahren der angelegten Spannung plus der Dauer des Polungsprozesses gegeben.

4.1.3 Spontane und erzwungene Domänenmuster

Ein typisches Beispiel für spontan während des Umpolens entstehende Domänenmuster wurde bereits bei der Beschreibung der Domänenvisualisierung mit dem Interferometer in Abschnitt 3.3.2 gezeigt. Bricht man einen Polungsvorgang während des Umpolens ab, indem man das angelegte elektrische Feld abschaltet, so wird das momentane Domänenmuster „eingefroren“. Die so entstandenen *teilgepolten*, also teilweise umgepolten, Kristalle zeigen für das jeweilige Material charakteristische, spontane Domänenstrukturen. Beispiele dafür zeigt Abb. 4.5.

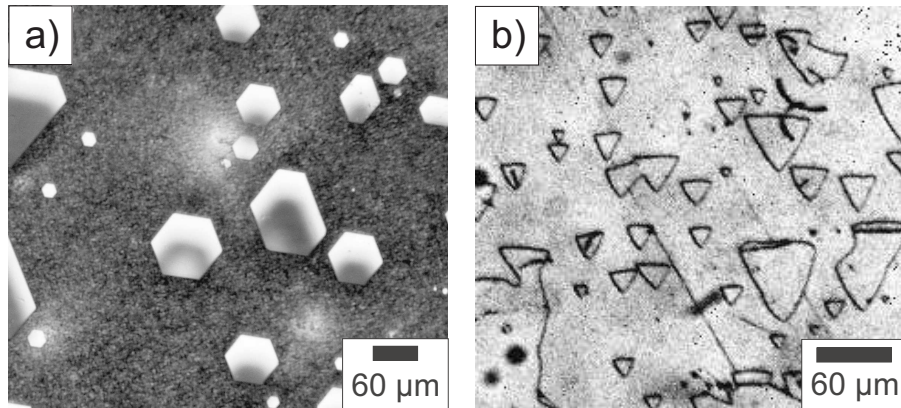


Abb. 4.5: Typische spontane Domänenmuster in teilgepolten, kongruent schmelzenden LiNbO_3 - (a) und LiTaO_3 -Kristallen (b), sichtbar gemacht durch Ätzen.

Man erkennt deutlich, dass die Domänen in LiNbO_3 eine hexagonale und in LiTaO_3 eine dreieckige Grundform aufweisen. In LiNbO_3 verlaufen die Domänenwände auch bei hoher Vergrößerung gerade, während in LiTaO_3 die Domänenwände erkennbar gebogen sind. In beiden Fällen verlaufen die Domänenwände entlang von drei ausgezeichneten Richtungen, die durch die Kristallachsen vorgegeben sind. Die Unterschiede im Kontrast zwischen den Domänen in den Bildern 4.5a und 4.5b ergeben sich aus Abweichungen beim Ätzprozess, der benutzt wurde, um die Domänen sichtbar zu machen. Sie haben für die Domänenmuster keine weitere Bedeutung.

Für Anwendungen interessanter als spontane Domänenmuster sind gezielt hergestellte (oder erzwungene) Domänenstrukturen. Abbildung 4.6 zeigt einen PPLN-Kristall, der mit der Methode der lithographisch strukturierten Elektroden hergestellt wurde (Abschnitt 3.3.3). Man sieht, dass das PPLN-Muster zwar von sehr guter Qualität aber keineswegs perfekt ist: Die umgepolten Streifen sind unterschiedlich breit, und auch die Breite jedes einzelnen Streifens variiert. Die Domänenwände verlaufen also nicht perfekt parallel, und das Tastverhältnis ändert sich über den Kristall.

4.2 Einfluss von Licht auf die ferroelektrischen Eigenschaften von LiNbO_3

Im folgenden Abschnitt werden die Auswirkungen von Licht auf die ferroelektrischen Eigenschaften von LiNbO_3 , insbesondere auf das Koerzitivfeld, untersucht. Dabei konzentriert sich die Untersuchung auf drei Effekte: thermische Effekte, die lichtinduzierte Beschleunigung der schnellen Relaxation und die Auswirkungen von intensivem UV-Licht auf den Polungsvorgang.

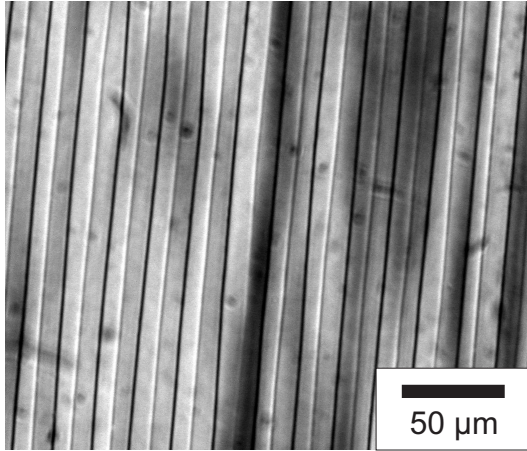


Abb. 4.6: Typischer PPLN-Kristall. Die Domänen sind durch Ätzen in Flusssäure sichtbar gemacht.

4.2.1 Thermische Effekte

Das Koerzitivfeld E_C von LiNbO_3 nimmt bei steigenden Temperaturen ab [61]. Beleuchtet man einen Kristall mit einem Lichtmuster, so wird sich die Probe in den hellen Bereichen durch Absorption erwärmen und so lokal ihr Koerzitivfeld ändern. In einer Reihe von Vorversuchen soll geklärt werden, ob dieser Effekt zur lichtdefinierten Strukturierung von Domänen genutzt werden kann.

Dazu werden LiNbO_3 -Kristalle während des Umpolens mit unterschiedlichen Lichtmustern beleuchtet. Als Pumplichtquelle dient ein Innova Sabre Ar^+ -Laser. Die verwendeten Lichtwellenlängen reichen von 351 bis 514 nm. Der Kristall wird wie üblich mit einer Spannungsrampe umgepolt. Das Domänenwachstum wird dabei mit dem Interferometer beobachtet (vgl. Abschnitt 3.3.2).

Es stellt sich heraus, dass bei Beleuchtung mit einem unaufgeweiteten UV-Lichtstrahl der Polungsprozess im beleuchteten Bereich früher beginnt als im Rest des Kristalls. Je nach Intensität und Lichtwellenlänge kann der Unterschied im Koerzitivfeld mehrere 100 V/mm betragen. Sichtbares Licht zeigt keinen oder nur einen sehr schwachen Einfluss.

In weiteren Versuchen wird das Streifenmuster einer binären Intensitätsmaske auf den Kristall abgebildet (Periodenlänge des Lichtmusters $\approx 500 \mu\text{m}$, Lichtwellenlänge 351 nm). Wieder sieht man, dass der Kristall in den beleuchteten Streifen zuerst anfängt zu umpolen. Aber bevor die einzelnen hexagonalen Mikrodomänen zu Streifen zusammenwachsen, erscheinen bereits neue Domänen in den unbeleuchteten Bereichen zwischen den Streifen, obwohl der Rest des Kristalls in einiger Entfernung vom Lichtmuster noch nicht anfängt zu polen. An Stelle eines Streifenmusters erhält man so nur eine große Domäne um den vom Laserstrahl beleuchteten Bereich.

4.2.2 Lichteinfluss auf die schnelle Relaxation

Die Messung des Lichteinflusses auf die schnelle Koerzitivfeld-Relaxation läuft analog zur Messung aus Abschnitt 4.1.2 ab. Allerdings wird die Probe jetzt bei jeder zweiten Polungssequenz während der Wartezeit t_w mit einem unaufgeweiteten Pump-Laserstrahl beleuchtet. Dabei wird, wie auch bei allen folgenden Experimenten, darauf geachtet, thermische Effekte zu minimieren. Die Wartezeit t_w wird möglichst kurz gehalten, damit der Unterschied zwischen dem aktuellen Koerzitivfeld $E_C(t = t_w)$ des unbeleuchteten Kristalls und dem Endwert des Koerzitivfeldes nach der Relaxation $E_C(t = \infty)$ möglichst groß ist (vgl. Abb. 4.4). Dadurch wird die mögliche lichtinduzierte Koerzitivfeldänderung maximiert. Als Pumplichtquellen dienen ein frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser (Typ Verdi V5) im Dauerstrichbetrieb, sowie ein gütegeschalteter, frequenzverdreifachter Nd:YAG-Pulslaser (Typ SL-804T der Firma Spectron). Typische Ergebnisse für das Vorwärts- und Rückwärtspolen mit und ohne Beleuchtung sind in Abb. 4.7 zusammengestellt. Die Messpunkte mit und ohne Beleuchtung liegen im Bereich der Streuung übereinander.

Es sei an dieser Stelle noch angemerkt, dass das gepulste UV-Licht bei den hier benutzten Intensitäten langfristig zur Beschädigung bis hin zur Zerstörung des Kristalls führt. Kristalle, die man während der Beleuchtung umpolt, werden sehr

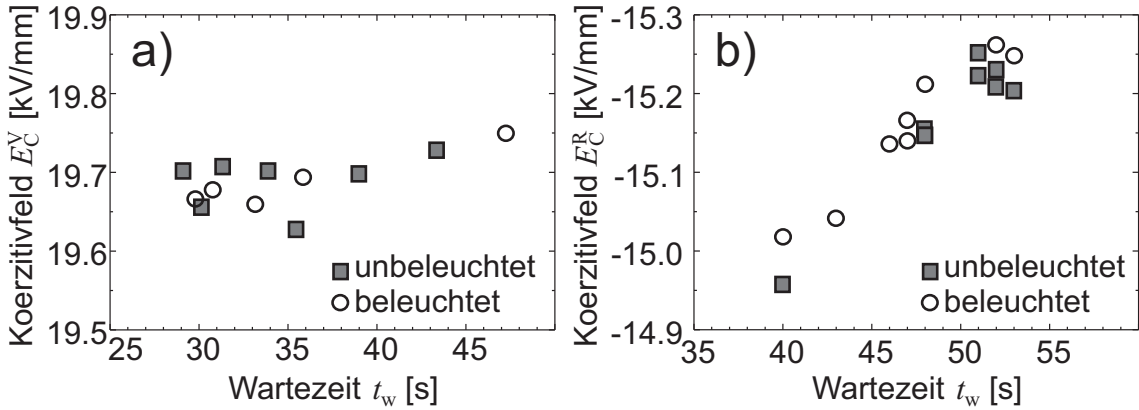


Abb. 4.7: Beeinflussung der schnellen Relaxation des Koerzitivfeldes von kongruent schmelzendem LiNbO_3 durch Beleuchtung. Aufgetragen ist die Koerzitivfeldstärke E_C für die Vorwärts- (a) und für die Rückwärtsrichtung (b) in Abhängigkeit von der Wartezeit t_w seit dem vorangegangenen Polungsvorgang jeweils mit und ohne Beleuchtung. Die Probe in a) wird mit einem UV-Puls-Laser (Wellenlänge $\lambda = 355 \text{ nm}$, mittlere Intensität $\bar{I} = 210 \text{ mW/cm}^2$, Repetitionsrate 10 Hz , Pulsdauer 15 ns) beleuchtet. Zur Beleuchtung der Probe in b) wird ein Dauerstrichlaser (Wellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$, Intensität $I = 1.5 \text{ W/cm}^2$) benutzt.

viel stärker geschädigt als nicht umgepolte Kristalle. Ein negativer Einfluss des sichtbaren Dauerstrich-Lichts auf die Kristallqualität konnte nicht festgestellt werden.

4.2.3 Einfluss intensiven UV-Lichts auf den Polungsprozess

Die Beleuchtung eines Kristalls mit intensivem UV-Licht während des Umpolens ist eine Methode zur Beeinflussung des ferroelektrischen Polungsverhaltens, die im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde.

Beeinflussung des Koerzitivfeldes

Zur Messung des Einflusses von intensivem UV-Licht auf das Koerzitivfeld von LiNbO_3 wird der in Abschnitt 3.3.2 beschriebene Polungsaufbau mit dem Interferometer eingesetzt. Als Pumplichtquelle dient der unaufgeweitete Strahl des Innova Sabre Ar^+ -Lasers. Eine Photodiode misst interferometrisch das Koerzitivfeld E_C im Zentrum des vom Laserstrahl beleuchteten Bereiches. Eine zweite Photodiode misst das Koerzitivfeld im unbeleuchteten Bereich und dient als Referenz. Zwischen zwei Polungsprozessen wird eine Pause von jeweils 6 min eingelegt, um transiente Effekte, z. B. auf Grund der schnellen Koerzitivfeld-Relaxation, zu unterdrücken.

Eine typische Messung der Koerzitivfelder im beleuchteten und im unbeleuchteten Bereich des Kristalls für eine Reihe sukzessiver Polungszyklen zeigt Abb. 4.8. Die Probe wird während der grau markierten Zeiträume durchgehend beleuchtet. Vor der Beleuchtung zeigen beide Detektoren das gleiche Koerzitivfeld an. Beleuchtung der Wellenlänge $\lambda = 351$ nm senkt das Koerzitivfeld vorübergehend leicht ab. Nach dem Ausschalten des Lasers nimmt es aber wieder den ursprünglichen Wert an. Beleuchtet man dagegen den Kristall mit Licht der Wellenlänge $\lambda = 334$ nm, so sieht man eine deutliche Verringerung des Koerzitivfeldes. Dieser Effekt dauert über das Ende der Beleuchtung hinweg an: Noch eine Stunde nach dem Ausschalten des Lasers ist das Koerzitivfeld im ehemals beleuchteten Bereich signifikant (über 800 V/mm) kleiner als im unbeleuchteten Bereich. Die fehlenden Messwerte während der Beleuchtung mit $\lambda = 334$ nm zeigen, dass das Interferometer den Phasensprung während des Polens häufig nicht auflösen konnte (vgl. Abschnitt 3.3.2).

Die Erniedrigung der Koerzitivfeldstärke tritt nur auf, wenn der Kristall *während* des Umpolens beleuchtet wird. Beleuchtung vor oder nach dem Polungsprozess zeigt keine Auswirkungen.

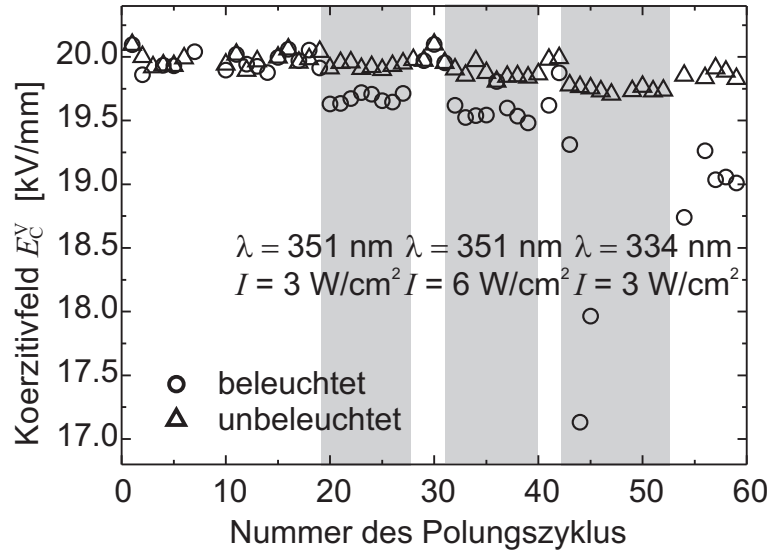


Abb. 4.8: Einfluss von intensivem UV-Licht auf das Polungsverhalten von LiNbO_3 . Der Graph zeigt das Koerzitivfeld in der Vorwärtsrichtung E_C^V , gemessen innerhalb (Kreise) und außerhalb (Dreiecke) der vom Laser beleuchteten Kristallregion, aufgetragen über der Nummer des Polungszyklus. Die grauen Balken markieren die Zeitintervalle, während derer der Kristall mit Licht der jeweils angegebenen Wellenlänge λ und der Intensität I beleuchtet wird.

Strukturiertes Polen durch Lichtmuster

Der eben beschriebene Effekt soll benutzt werden, um ein lichtdefiniertes Domänenmuster in LiNbO_3 zu erzeugen. Dazu wird der Kristall wie in Abschnitt 3.4 beschrieben während 4 Polungszyklen mit dem Fresnel-Muster einer binären Maske beleuchtet (UV-Multiline, Intensität $I = 55 \text{ W/cm}^2$, davon $I < 6 \text{ W/cm}^2$ mit einer Wellenlänge $\lambda \leq 334 \text{ nm}$, 40 s Wartezeit zwischen Polungsvorgängen). Danach wird der Laser abgeschaltet. Der Kristall wird weiter umgepolt, und einer der folgenden Vorwärtspolvorgänge wird abgebrochen, sobald ein deutlicher Polungsstrom auftritt. Der teilweise umgepolte Kristall wird geätzt, um das Domänenmuster sichtbar zu machen.

Wie in Abschnitt 3.4 beschrieben, zeigt das Lichtmuster zwei prinzipielle Charakteristika: Eine grobe Struktur mit Doppellinien im Abstand von ca. $500 \mu\text{m}$ und eine feine quasi-periodische Struktur mit einer Periodizität von ca. $8 \mu\text{m}$. Abbildung 4.9a zeigt eine lichtmikroskopische Aufnahme des erzeugten Domänenmusters. Die Doppellinien sind deutlich zu erkennen.

In Abb. 4.9b ist eine der Doppellinien vergrößert dargestellt. Man erkennt, dass die Linien aus einer Vielzahl kleiner, separater Domänen bestehen. Außerhalb

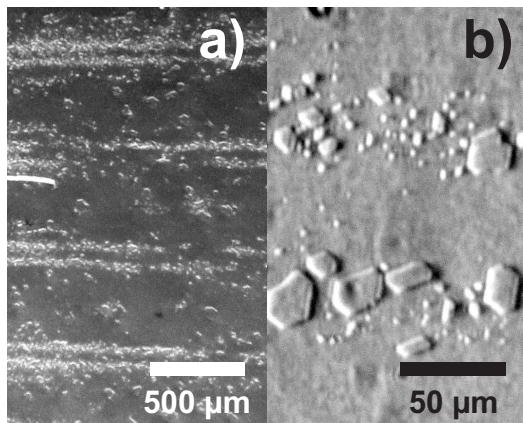


Abb. 4.9: Mikroskopische Bilder eines geätzten LiNbO_3 -Kristalls mit einem lichtdefinierten Domänenmuster. a) Übersicht: Die charakteristischen Doppelstreifen sind gut zu erkennen. b) Vergrößerung eines Doppelstreifens, um den Kontrast zwischen den Streifen und dem nicht umgepolten Hintergrund zu zeigen.

der Linien sind kaum Domänen vorhanden.

Eine Rasterkraftmikroskop-Aufnahme aus einem anderen Bereich des Kristalls ist in Abb. 4.10 dargestellt. Sie zeigt kleine hexagonale Domänen, die in einem Streifenmuster angeordnet sind. Der Abstand der Streifen voneinander entspricht mit ca. $8\ \mu\text{m}$ der Periodizität des Lichtmusters.

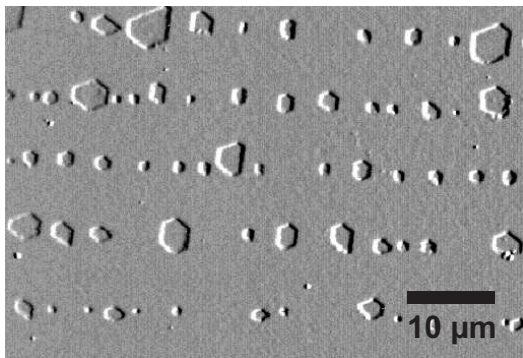


Abb. 4.10: Rasterkraftmikroskopisches Bild eines geätzten LiNbO_3 -Kristalls mit einem lichtdefinierten Domänenmuster.

4.3 Einfluss von ferroelektrischen Domänen auf transmittiertes Licht

Im folgenden Abschnitt wird der Einfluss von ferroelektrischen Domänen auf transmittiertes Licht an Hand der auftretenden Beugungsmuster untersucht, sowohl mit als auch ohne externem elektrischen Feld. Dabei werden zunächst Ergebnisse zur Nahfeld-Beugung an Domänenstrukturen vorgestellt. Im Anschluss daran werden Fernfeld-Beugungsmuster an einzelnen Domänenwänden, an periodisch gepolten Kristallen und an beliebigen Domänenstrukturen behandelt. Der Abschnitt endet mit Untersuchungen zur Dynamik von Fernfeld-Beugungsmustern während des Umpolens.

Alle Beugungsexperimente werden mit polierten und ungeätzten Proben durchgeführt. Erst im Anschluss werden die Proben geätzt, um die Domänenstrukturen sichtbar zu machen.

4.3.1 Direkte Visualisierung ferroelektrischer Domänenwände im Nahfeld

Die Visualisierung ferroelektrischer Domänenwände geschieht mit dem in Abb. 3.8b gezeigten Aufbau zur Messung des Beugungsmusters im Nahfeld. Ein typisches auf diese Weise aufgenommenes Nahfeld-Beugungsmuster eines teilgepolten LiNbO_3 -Kristalls zeigt Abb. 4.11a. Abbildung 4.11b zeigt einen entsprechenden Ausschnitt des im Kristall vorhandenen Domänenmusters.

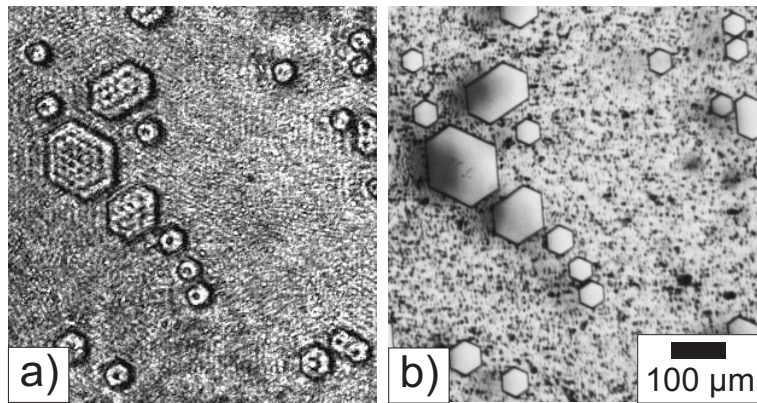


Abb. 4.11: Vergleich des Nahfeld-Lichtmusters (a) und des geätzten Domänenmusters (b) eines teilgepolten LiNbO_3 -Kristalls. Das Nahfeldmuster ist ohne Spannung mit Licht der Wellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$ hinter dem ungeätzten Kristall aufgenommen worden. Das Domänenmuster entstand nach dem Ätzen in Flusssäure.

Der Vergleich der beiden Bilder zeigt, dass die Domänenwände im Nahfeldmuster als dunkle Linien sichtbar sind. Durch Verschieben der zum Abbilden benutzten Linse lassen sich Kontrast und Auflösung variieren. Bewegt man die Linse aus dem Fokus heraus (stellt man die Abbildung also unscharf), so entwickeln sich die einzelnen Linien in interferenzartige Linienmuster. Je stärker man die Linse aus dem Fokus bewegt, um so stärker wird das Linienmuster und um so mehr Linien werden sichtbar. Umgekehrt werden die Linien dünner und schärfer, wenn man die Abbildung besser fokussiert. Auf diese Weise kann man kleinere Strukturen erkennen. Allerdings begrenzt der abnehmende Kontrast der Linien die Auflösung des Aufbaus: Stellt man die Abbildung perfekt scharf, sind keine Domänengrenzen mehr zu erkennen. Bei einer Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$ können Strukturen bis

hinunter zu einer Größe von ca. 10 μm beobachtet werden. Das Foto in Abb. 4.11a zeigt einen Kompromiss zwischen Kontrast und Auflösung.

Eine weitere Möglichkeit, den Kontrast des Nahfeld-Beugungsmusters zu variieren, ist das Anlegen eines externen elektrischen Feldes E an den Kristall. Mit steigendem E ändert sich der Kontrast periodisch: die Domänenwände im Nahfeld-Beugungsmuster erscheinen und verschwinden in regelmäßigen Intervallen des elektrischen Feldes. Tabelle 4.2 gibt die Differenz ΔE_{\min} zwischen aufeinander folgenden Kontrastminima für unterschiedliche Lichtwellenlängen λ in LiNbO_3 an. Zusätzlich ist das elektrische Feld E_{\max}^0 angegeben, bei der das erste Maximum im Kontrast auftritt. Unabhängig von der Lichtwellenlänge liegt das erste Kontrastminimum immer beim gleichen äußeren elektrischen Feld ($E_{\min}^0 = +1.6 \text{ kV/mm}$ für neu umgepoltes LiNbO_3). Zusammenfassend lässt sich sagen, dass es im Allgemeinen möglich ist, die Sichtbarkeit der Domänenwände durch das Anlegen eines elektrischen Feldes zu erhöhen. Im ultravioletten Spektralbereich ist der Kontrast neu gepolter Domänenwände aber auch ohne zusätzliches elektrisches Feld nahezu maximal.

λ [nm]	ΔE_{\min} [kV/mm]	E_{\max}^0 [kV/mm]
334	2.4	+0.4
351	3.0	≈ 0
364	3.6	-0.2
455	7.0	-2.0
488	8.2	-2.6

Tab. 4.2: Verhalten des Kontrasts der Domänenwände von LiNbO_3 im Nahfeld-Beugungsmuster für unterschiedliche Lichtwellenlängen λ .

Die Visualisierung von Domänenwänden im Nahfeld lässt sich direkt auf LiTaO_3 - und PPLN-Kristalle übertragen. Abbildung 4.12 zeigt ein so aufgenommenes spontanes Domänenmuster in LiTaO_3 . Ein Beispiel für PPLN zeigt Abb. 4.13. Periodische Muster sind vergleichsweise schwierig zu visualisieren, da sich die Linienmuster der einzelnen Domänenwände bei schlechter Fokussierung zu neuen Streifenmustern überlagern.

Erste Versuche mit LiNbO_3 zeigen, dass sich die entwickelte Methode auch sehr gut zur Echtzeitvisualisierung der Domänen während des Polungsprozesses einsetzen lässt. Für die Echtzeitbeobachtung des Umpolens in LiTaO_3 ist sie weniger geeignet, da die Domänenwände im Nahfeld-Beugungsmuster „nachleuchten“, also auch noch für einige Zeit nach einer Domänenwandbewegung am ursprünglichen Ort zu sehen sind.

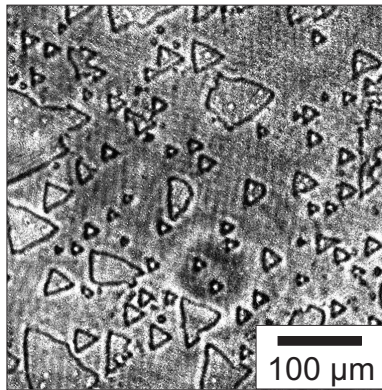


Abb. 4.12: Nahfeld-Lichtmuster eines teilgepolten LiTaO_3 -Kristalls. Die dreieckigen Domänen sind deutlich zu erkennen. Aufgenommen ohne externes elektrisches Feld mit Licht der Wellenlänge $\lambda = 334 \text{ nm}$.

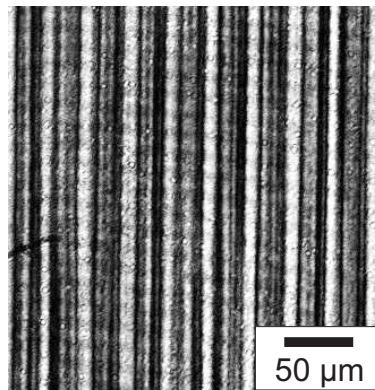


Abb. 4.13: Nahfeld-Lichtmuster eines periodisch gepolten LiNbO_3 -Kristalls. Aufgenommen bei einem externen elektrischen Feld $E = 200 \text{ V/mm}$ mit Licht der Wellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$.

4.3.2 Lichtbeugung an einer einzelnen Domänenwand im Fernfeld

Zur Beobachtung des Fernfeld-Beugungsmusters einer einzelnen Domänenwand wird der bereits in Abb. 3.8a vorgestellte Aufbau benutzt. Als Probe wird ein teilweise umgepolter LiNbO_3 -Kristall (vgl. Abschnitt 4.1.3) genommen, welcher eine spontane Domänenstruktur mit einer sehr geraden, makroskopisch langen, einzelnen Domänenwand aufweist. Als Lichtquelle dient der aufgeweitete Strahl des Ar^+ -Ionenlasers. Eine kreisförmige Blende wird so vor dem Kristall in den Strahl plaziert, dass nur eine einzelne, vertikal verlaufende Domänenwand beleuchtet wird. Der beleuchtete Bereich auf der Probe hat einen Durchmesser von ca. 0.4 mm (gemessen mit dem Nahfeldaufbau).

Auf Grund der geringen Lichtintensität hinter der Lochblende wird das Beugungsmuster direkt auf einen CCD-Chip gegeben und nicht, wie in Abb. 3.8a gezeigt, auf einen fluoreszierenden Schirm. Da der CCD-Chip zu klein für das gesamte Beugungsbild ist, wird der Abstand zum Kristall auf 32 mm verkürzt. Somit handelt es sich um einen Grenzfall eines Fernfeld-Beugungsmusters gemäß der Definition in Abschnitt A.1. Die rechte und die linke Seite des Beugungsmusters werden getrennt aufgenommen. Alle angelegten elektrischen Felder liegen deutlich unterhalb der Koerzitivfeldstärke, so dass sich die Domänenstruktur nicht weiter ändert.

Die beobachteten Beugungsmuster der einzelnen Domänenwand bei unterschiedlichen Werten des elektrischen Feldes E sind in Abb. 4.14 links zu sehen. Die rechte Seite zeigt die dazugehörigen Intensitätsverteilungen. Beim Anlegen eines elektrischen Feldes E wird ein Teil des Lichtes von der Domänenwand abgelenkt.

Diese Ablenkung ist nicht symmetrisch zur Domänenwand sondern gerichtet. Dabei wird die Richtung der Ablenkung vom Vorzeichen des elektrischen Feldes E bestimmt, während der Ablenkungswinkel des Hauptbeugungsmaximums α_{\max} grob mit dem Betrag von E skaliert. Außer dem intensivsten Hauptbeugungsmaximum, welches am stärksten abgelenkt wird, sind bei höheren elektrischen Feldern zusätzlich schwächere Nebenmaxima sichtbar.

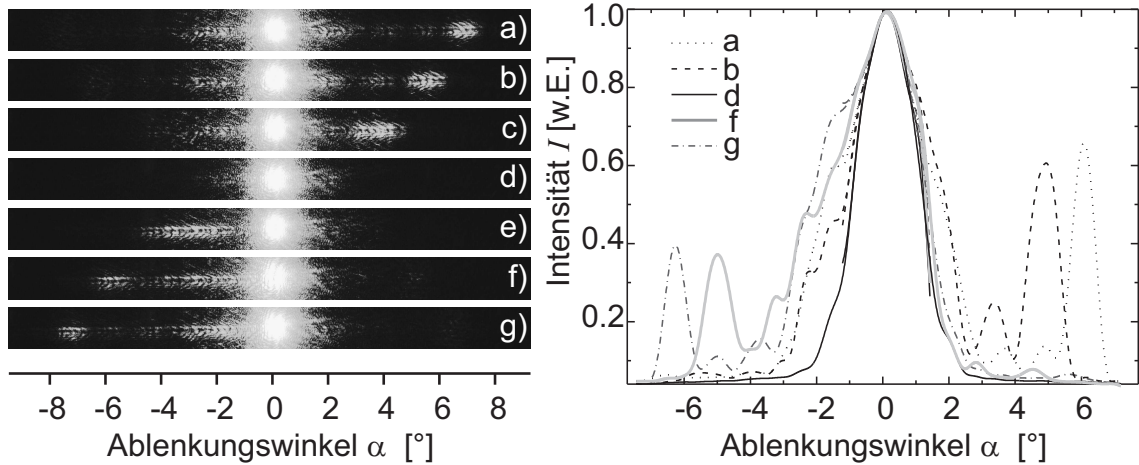


Abb. 4.14: Beugungsmuster bei Beleuchtung einer einzelnen Domänenwand als Aufnahme (links) und als geglättete und normierte Intensitätsverteilung (rechts) aufgetragen über dem Ablenkungswinkel α für unterschiedliche angelegte elektrische Felder E . Die Domänenwand verläuft vertikal bei $\alpha = 0^\circ$ durch das Zentrum des Strahls. Die Werte für E in [kV/mm] sind: a) -12 ; b) -8 ; c) -4 ; d) 0 ; e) $+4$; f) $+8$; g) $+12$.

Um den abgelenkten Anteil der Gesamtlichtintensität zu messen, wird der Aufbau entsprechend Abb. 4.15a modifiziert. Der transmittierte Hauptstrahl und eine Seite des Beugungsmusters werden durch eine Blende abgedeckt, so dass ohne äußeres elektrisches Feld ca. 99.5% des Lichts ausgeblendet wird. Eine Photodiode misst die an der Blende vorbei abgelenkte Leistung in Abhängigkeit von E . Abbildung 4.15b zeigt das Ergebnis der Messung. Abhängig vom elektrischen Feld werden bis zu 4% der Gesamtleistung abgelenkt.

Bisher bezogen sich alle Ergebnisse zur Beugung an einer einzelnen Domänenwand auf LiNbO_3 . Entsprechende Messungen in LiTaO_3 ergeben qualitativ das gleiche Verhalten. Quantitative Messungen an LiTaO_3 -Proben sind jedoch schwierig, da gerade verlaufende, einzelne Domänenwände in der benötigten Länge mit vertretbarem Aufwand nicht herzustellen sind. Wie bereits in Abschnitt 4.1.3 bemerkt, sind längere Domänenwände in LiTaO_3 immer etwas gebogen, was das Beugungsmuster der Domänenwand verfälscht.

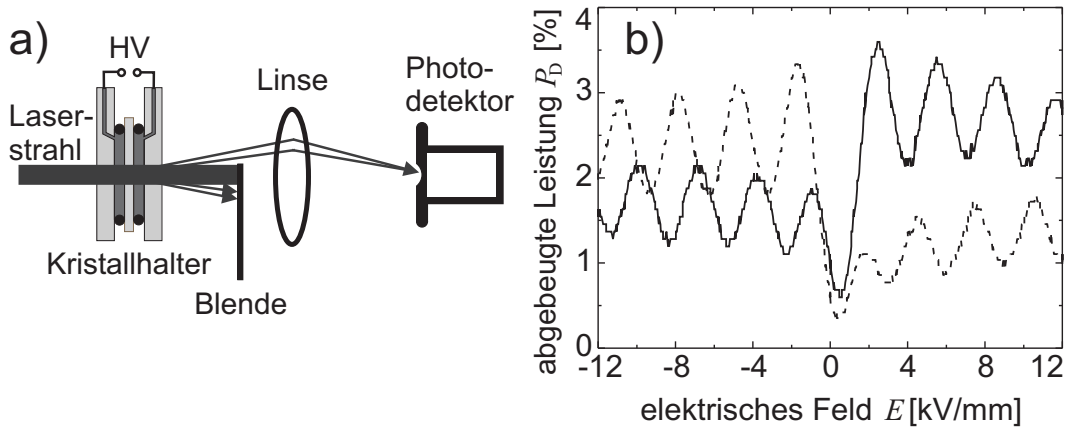


Abb. 4.15: Messung der an einer einzelnen Domänenwand abgebeugten Laserleistung. a) Schematischer Messaufbau; b) Der nach links (durchgezogene Kurve) bzw. nach rechts (gestrichelte Kurve) abgebeugte Prozentsatz der Gesamtlaserleistung aufgetragen über dem angelegten elektrischen Feld E .

4.3.3 Lichtbeugung an periodisch gepoltem LiNbO₃

Zur Beobachtung der Fernfeld-Beugungsmuster von periodisch gepolten LiNbO₃-Kristallen wird erneut der in Abb. 3.8a gezeigte Aufbau benutzt. Die PPLN-Proben werden so in den Halter eingebaut, dass der PPLN-Gittervektor horizontal ausgerichtet ist (d. h. die Streifen verlaufen vertikal). Alle PPLN-Kristalle werden vor der Messung kurz bei ≈ 250 °C getempert.

Abbildung 4.16a–m zeigt typische Fernfeld-Beugungsmuster hinter einem PPLN-Kristall bei unterschiedlichen externen elektrischen Feldern E . Die Muster bestehen aus äquidistanten Beugungsmaxima. Für eine Lichtwellenlänge $\lambda = 333$ nm beträgt der Winkel zwischen zwei Maxima 0.65° . Größe und Intensitätsverteilung der Beugungsmaxima entsprechen der Größe und Intensitätsverteilung des einfallenden Lichtstrahls. Erhöht man das angelegte elektrische Feld, so sieht man zwei prinzipielle Änderungen: Die Intensität jedes einzelnen Maximums ändert sich periodisch, und es wird mehr Licht in höhere Beugungsmaxima abgebeugt. Der hohe Kontrast der periodischen Änderung wird in Abb. 4.16A–D exemplarisch am Beispiel des transmittierten Strahls und den ± 1 . Maxima gezeigt.

Beide Effekte werden noch offensichtlicher, wenn man die Intensität, die in ein bestimmtes Maximum gebeugt wird über dem angelegten elektrischen Feld E aufträgt (Abb. 4.17). Die Intensität des transmittierten Strahls (0. Beugungsmaximum) zeigt eine deutliche Periodizität von $\Delta E_B \approx 2.4$ kV/mm für $\lambda = 333$ nm. Höhere Beugungsmaxima erreichen erst bei starken elektrischen Feldern ein Intensitätsmaximum und zeigen generell ein weniger regelmäßiges Verhalten. Aber

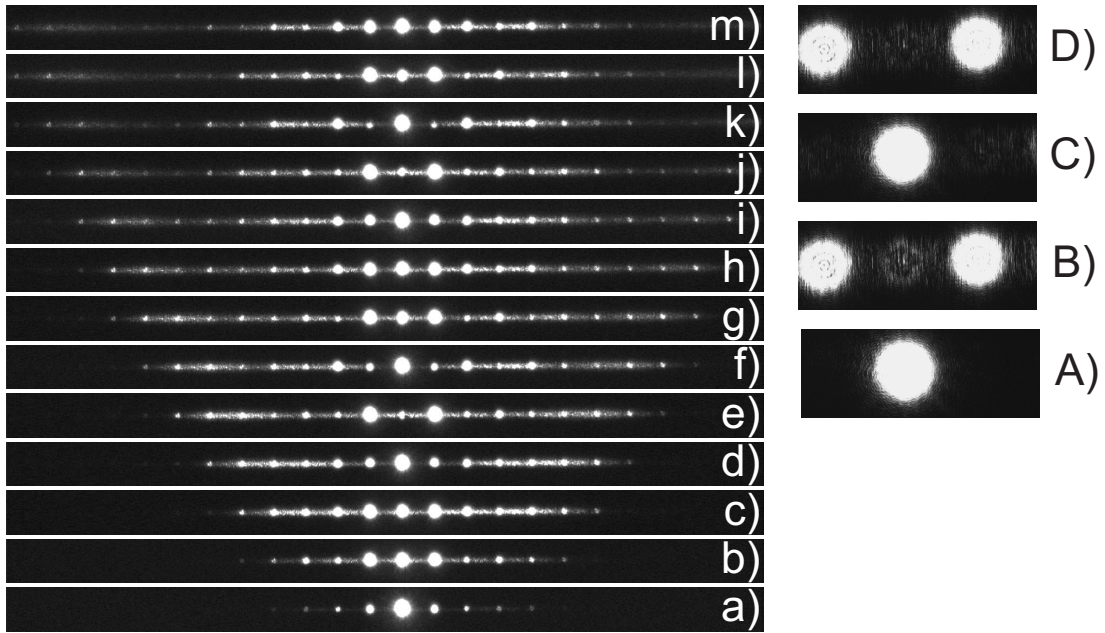


Abb. 4.16: Typische Fernfeld-Beugungsmuster eines periodisch gepolten LiNbO_3 -Kristalls bei unterschiedlichen externen elektrischen Feldern E . Der Wert von E geht von a) 0.0 kV/mm bis m) 12.0 kV/mm in 1.0 kV/mm Schritten. A–D zeigen vergrößert den Kontrast zwischen dem transmittierten Strahl, dem +1. und dem -1. Maximum für elektrische Felder E von in [kV/mm]: A) 0.2, B) 1.9, C) 3.3 und D) 4.9. Lichtwellenlänge $\lambda = 333$ nm, PPLN-Periodenlänge $\Gamma = 29.5$ μm , Tastverhältnis $\kappa \approx 0.5$. Die Interferenzringe treten wegen der Beleuchtung durch eine Irisblende auf.

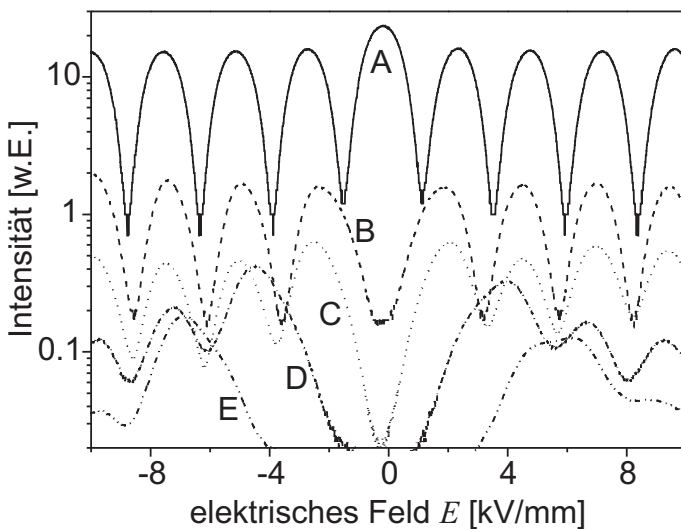


Abb. 4.17: Abgebeugte Intensität über dem angelegten elektrischen Feld E für den transmittierten Strahl (0. Maximum, Kurve A), das 2. (B), 4. (C), 6. (D) und das 8. Beugungsmaximum (E). Lichtwellenlänge $\lambda = 333$ nm, Periodenlänge $\Gamma = 29.5$ μm , Tastverhältnis $\kappa \approx 0.5$.

auch bei ihnen konvergiert für steigendes E der Abstand zwischen den Intensitätsmaxima ΔE_B gegen den gleichen Wert wie für das 0. Beugungsmaximum. Für die hier dargestellte Probe mit einem Tastverhältnis $\kappa \approx 0.5$ ist die Intensitätsverteilung praktisch symmetrisch für positive und negative elektrische Felder.

Diese Symmetrie verschwindet, wenn man Proben mit einem anderen Tastverhältnis κ untersucht. Dies zeigt Abb. 4.18 am Beispiel des 0. Beugungsmaximums von drei verschiedenen PPLN-Proben mit der gleichen Periodenlänge Γ aber unterschiedlichen κ . Je stärker sich das Tastverhältnis vom symmetrischen Wert $\kappa = 0.5$ entfernt, um so weniger symmetrisch bezüglich des Vorzeichens von E werden die Kurven. Um diese Asymmetrie quantitativ zu erfassen, wird die Differenz zwischen der Höhe des ersten Intensitätsminimums I_0^- für ein negatives elektrisches Feld und dem ersten Intensitätsminimum I_0^+ für ein positives elektrisches Feld genommen. Zum besseren Verständnis sind I_0^- und I_0^+ in Abb. 4.18 für $\kappa = 0.2$ eingezeichnet. Diese Differenz ist in Abb. 4.19 über dem Tastverhältnis κ der Proben aufgetragen. Man sieht, dass eine nahezu lineare Abhängigkeit zwischen $I_0^- - I_0^+$ und κ besteht.

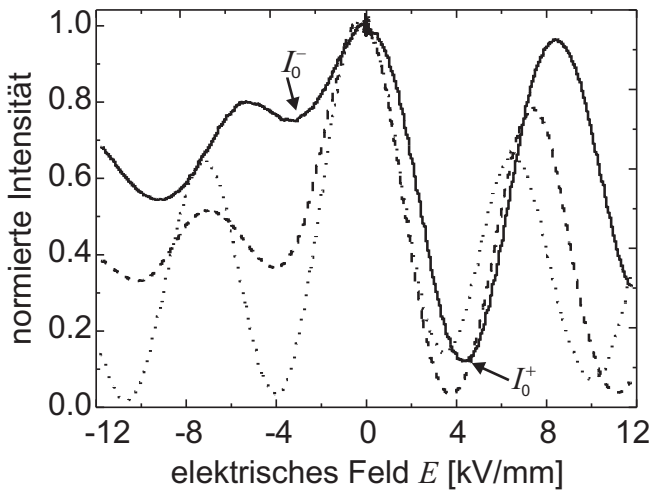


Abb. 4.18: Transmittierte Intensität (0. Maximum) über E für unterschiedliche Tastverhältnisse κ . Die Kurven entsprechen Tastverhältnissen von $\kappa = 0.2$ (durchgezogene Linie), 0.3 (gestrichelte Linie) und 0.55 (gepunktete Linie). Für $\kappa = 0.2$ sind die Positionen der ersten Intensitätsminima bei negativer und bei positiver Spannung, I_0^- und I_0^+ , eingezeichnet. Periodenlänge $\Gamma = 25 \mu\text{m}$, Wellenlänge $\lambda = 455 \text{ nm}$.

Ändert man die Lichtwellenlänge λ , so ändert sich sowohl der Abstand der Punkte als auch die Periodizität ΔE der Punktintensität bei Variation des angelegten elektrischen Feldes E . Abbildung 4.20 zeigt den Winkel zwischen benachbarten Beugungsmaxima in Abhängigkeit von der Lichtwellenlänge λ . Die Beziehung ist offenbar linear. Die entsprechenden Messwerte für die Periodizität ΔE_B sind in Tab. 4.3 zusammengestellt.

Streulicht erzeugt eine teils sehr deutliche Hintergrundintensität zwischen den Beugungsmaxima (vgl. Abb. 4.16). Dieser Hintergrund ist bei allen untersuchten

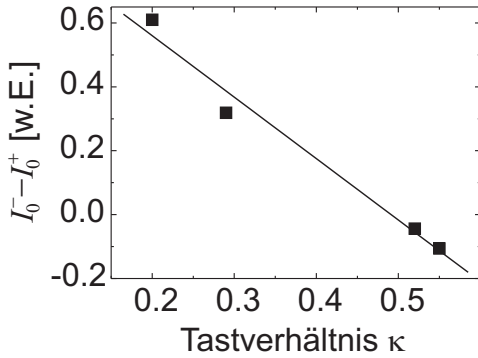


Abb. 4.19: Intensitätsdifferenz $I_0^- - I_0^+$ zwischen dem ersten Intensitätsminimum des transmittierten Strahls bei positiven und bei negativen Werten des elektrischen Feldes (vgl. Abb. 4.18). Die durchgezogene Linie ist die lineare Regression der Messwerte.

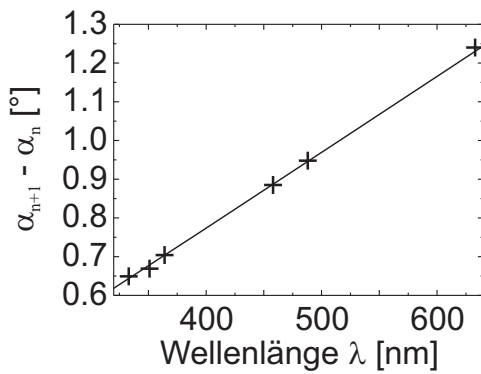


Abb. 4.20: Winkel zwischen benachbarten Beugungsmaxima ($\alpha_{n+1} - \alpha_n$) in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ . Die durchgezogene Linie ist die theoretische Kurve für die PPLN-Periodenlänge $\Gamma = 29.5 \mu\text{m}$ (siehe Abschnitt 5.4.3).

Lichtwellenlänge λ [nm]	333	351	364	455	488
ΔE_B [kV/mm]	2.4	3.1	3.7	6.8	8.4

Tab. 4.3: Periodizität ΔE_B des transmittierten Strahls (0. Beugungsmaximum) für unterschiedliche Lichtwellenlängen λ .

Proben vorhanden. Allerdings variiert die relative Intensität des Streulichts von Probe zu Probe und teilweise sogar an verschiedenen Stellen der selben Probe.

Zweidimensionale PPLN-Strukturen

Zusätzlich zu den bekannten eindimensionalen PPLN-Kristallen ist es auch möglich, zweidimensional periodisch gepolte Strukturen zu erzeugen. Solche Proben lassen sich auf die gleiche Weise untersuchen. Abbildung 4.21 zeigt ein Beispiel eines solchen zweidimensionalen PPLNs und des dazugehörigen Fernfeld-Beugungsmusters. Entsprechend dem zweidimensional periodischen Domänenmuster erhält man ein zweidimensionales Punktmuster. Die Abhängigkeit des Beugungsmusters vom elektrischen Feld ist analog zum eindimensionalen Fall.

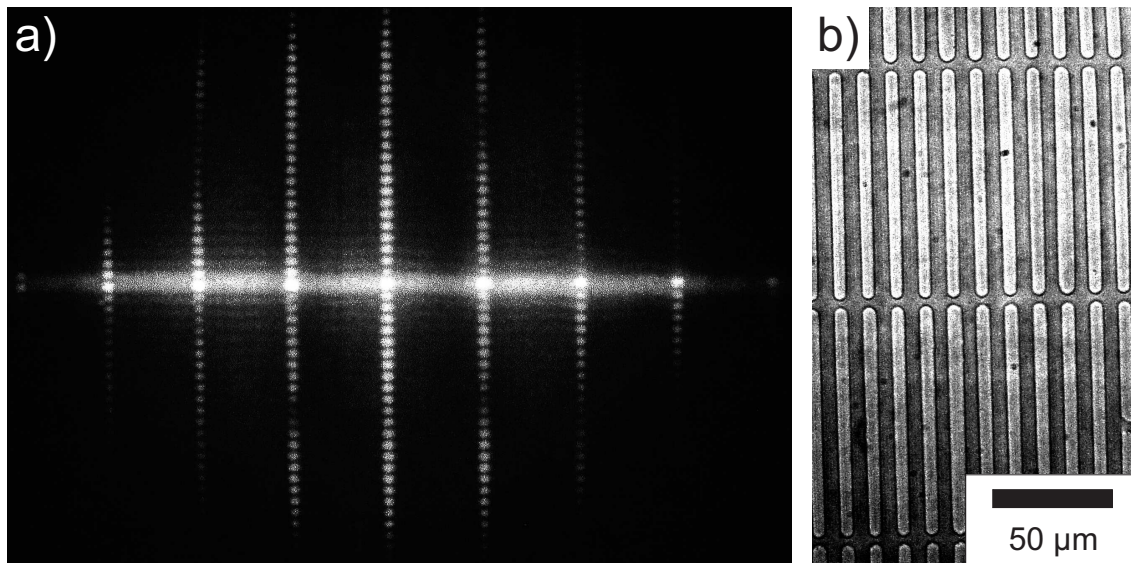


Abb. 4.21: a) Typisches Fernfeld-Beugungsmuster eines zweidimensionalen PPLN-Kristalls. b) Bild des verwendeten Kristalls nach dem Ätzen in HF. Angelegtes elektrisches Feld $E = 12 \text{ kV/mm}$, Lichtwellenlänge $\lambda = 455 \text{ nm}$, PPLN-Periodenlängen $\Gamma_1 = 12 \text{ }\mu\text{m}$ (horizontal) und $\Gamma_2 = 100 \text{ }\mu\text{m}$ (vertikal).

4.3.4 Sternförmige Beugungsmuster an spontanen Domänenstrukturen

In diesem und im folgenden Abschnitt werden die Fernfeld-Beugungsmuster von spontanen Domänenstrukturen in LiNbO_3 - und LiTaO_3 -Kristallen untersucht. Dabei wird zuerst die Beugung an sogenannten „eingefroren“ Domänenstrukturen behandelt, also an Domänen, die sich während der Untersuchung nicht ändern. Auf diese Weise kann gezielt die Abhängigkeit der Beugungsmuster von einzelnen Parametern wie der Domänengröße und -form, dem elektrischen Feld, der Lichtwellenlänge oder dem Einfallswinkel untersucht werden. Im Gegensatz dazu werden im folgenden Abschnitt Beugungsmuster während des Polungsvorgangs untersucht, also bei sich verändernden Domänen. Zusätzlich wird der Spezialfall der Beugungsmuster beim Umpolen mit Beleuchtung durch sehr kurze UV-Wellenlängen behandelt.

Zur Beobachtung der Fernfeld-Beugungsmuster von spontanen Domänenstrukturen wird erneut der in Abb. 3.8a gezeigte Aufbau benutzt. Die Herstellung der zu untersuchenden teilgepolten Proben mit spontanen Domänenstrukturen ist im Abschnitt 4.1.3 beschrieben.

Abbildung 4.22 zeigt zwei typische spontane Domänenmuster in LiNbO_3 mit den dazugehörigen Fernfeld-Beugungsmustern. In diesen, wie in allen folgenden

Fernfeld-Beugungsbildern ist der transmittierte Hauptstrahl ausgeblendet. Beide Domänenmuster weisen die für LiNbO_3 charakteristischen hexagonalen Domänen auf, sie unterscheiden sich aber in deren Größe. Die dazugehörigen Fernfeldbeugungsmuster zeigen jeweils einen sehr ausgeprägten 6-strahligen „Stern“. Diese Sternmuster sind auffällig groß (für $E = -12 \text{ kV/mm}$ ist der maximale Ablenkungswinkel $> 7^\circ$) und besitzen eine perfekte 6-zählige Rotationssymmetrie. Die „Strahlen“ der Sterne weisen eine Unterstruktur mit Intensitätsminima und -maxima auf. Dabei wird das stärkste Intensitätsmaximum am weitesten abgelenkt. Die beiden Sternmuster unterscheiden sich jedoch in der Ausprägung der

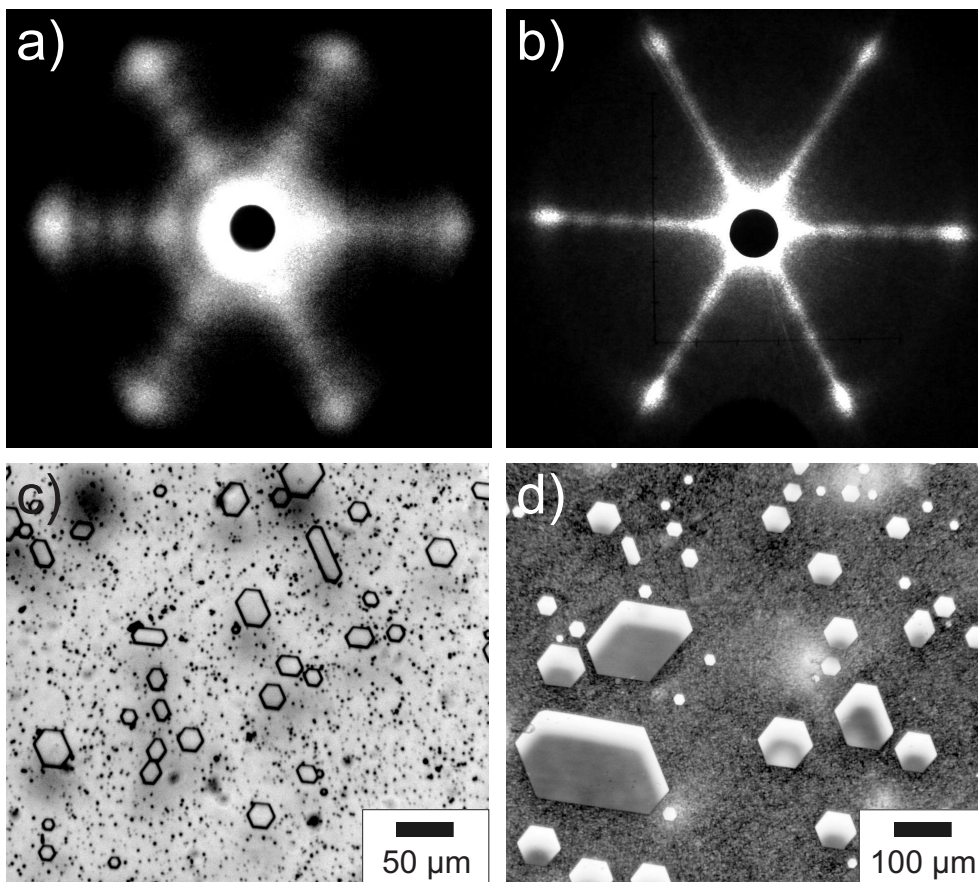


Abb. 4.22: Typische Fernfeld-Beugungsmuster (a und b) mit den sie erzeugenden, durch Ätzen sichtbar gemachten, spontanen Domänenstrukturen (c und d) in LiNbO_3 . Der Ablenkungswinkel der äußeren Maxima in a und b beträgt ungefähr 7.1° . Der Kristall in d) wurde länger umgepolt als der in c). Dadurch sind die Domänenstrukturen im Mittel deutlich größer. Die Bilder der Beugungsmuster und der Domänenmuster sind nicht zueinander ausgerichtet. Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$, angelegtes elektrisches Feld $E = -12 \text{ kV/mm}$.

Strahlen. Bei der Probe mit den größeren Domänen (Abb. 4.22d) zeigt der Stern sehr deutliche, scharf abgegrenzte Strahlen (Abb. 4.22b). Im Gegensatz dazu erzeugt die Probe mit den kleineren Domänen (Abb. 4.22c) ein Beugungsmuster mit breiten, weniger scharf ausgeprägten Strahlen (Abb. 4.22a). Zusätzlich zu den Strahlen kann man in beiden Beugungsbildern ganz schwach konzentrische Kreise erkennen, die gleiche Maxima an unterschiedlichen Strahlen verbinden.

Abbildung 4.23 enthält weitere Beispiele von Domänenstrukturen mit den dazugehörigen Fernfeld-Beugungsmustern. Das „quasi-spontane“ Domänenmuster aus Abb. 4.23c wird erzeugt, indem man ein elektrisches Feld kurz unterhalb der Koerzitivfeldstärke für mehrere Stunden an einen bereits teilweise umgepolten LiNbO_3 -Kristall anlegt, während man mit UV-Licht ($\lambda = 351 \text{ nm}$) beleuchtet. Man sieht, dass das hexagonale Domänenmuster verschwunden ist:

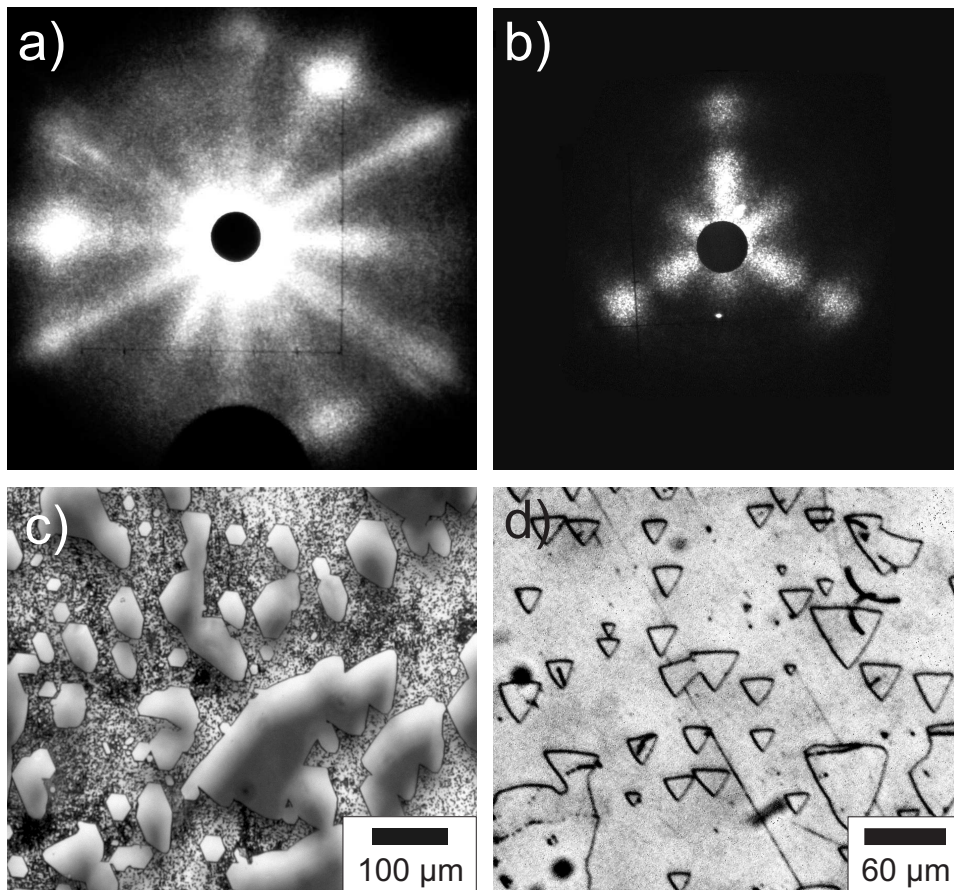


Abb. 4.23: c) Quasi-Spontanes Domänenmuster eines LiNbO_3 -Kristalls. d) Spontanes Domänenmuster eines LiTaO_3 -Kristalls. a) und b): die dazugehörigen Fernfeld-Beugungsmuster. Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$, angelegtes elektrisches Feld $E = -12 \text{ kV/mm}$.

die Domänenwände verlaufen nicht mehr notwendigerweise entlang den ursprünglichen drei Richtungen. Das Sternmuster hat sich ebenfalls verändert: anstatt 6 Strahlen sind in Abb. 4.23a mindestens 12 zu erkennen. Abbildung 4.23c zeigt die typischen dreieckigen Domänen in LiTaO_3 . Der dazugehörige Stern (Abb. 4.23b) weist drei Strahlen im 120° -Winkel zueinander auf.

Abhängigkeit vom elektrischen Feld

Die sternförmigen Beugungsmuster hängen vom angelegten elektrischen Feld E ab. Abbildung 4.24 zeigt das Fernfeld-Beugungsmuster eines LiNbO_3 -Kristalls für verschiedene Werte von E . Man sieht, dass sich Größe und Ausprägung des Sterns ändern. Für $E = 1.6 \text{ kV/mm}$ (aber nicht für $E = 0$!) verschwindet der Stern fast vollständig (Abb. 4.24d).

Die Änderung der Größe des Sterns ist in Abb. 4.25 noch einmal als Öffnungswinkel α_o in Abhängigkeit von E gezeigt. Zur Bestimmung des Öffnungswinkels, wird eine willkürliche Lichtintensität als „Grenze“ des Sterns definiert. Im Gegensatz dazu gibt der Ablenkungswinkel des Hauptmaximums α_{\max} den Winkel an, unter dem das Intensitätsmaximum des abgebeugten Lichts auftritt. Der Vorteil des Öffnungswinkels ist, dass er im Gegensatz zu α_{\max} auch für Sterne bestimmt werden kann, die kein wohldefiniertes Hauptmaximum zeigen (z. B. in Abb. 4.24c-e).

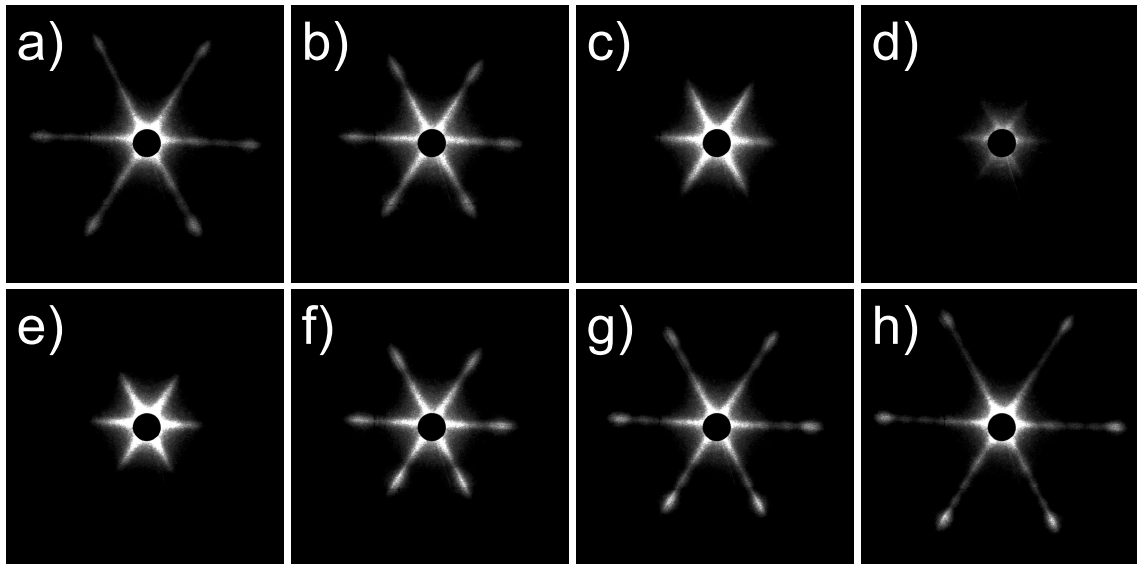


Abb. 4.24: Fernfeld-Beugungsmuster des gleichen spontanen Domänenmusters in LiNbO_3 bei unterschiedlich starken elektrischen Feldern E . Die Werte für E in $[\text{kV/mm}]$ sind: a) +12; b) +8; c) +4; d) +1.6; e) 0; f) -4; g) -8; h) -12. Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$, alle Bilder haben den selben Maßstab.

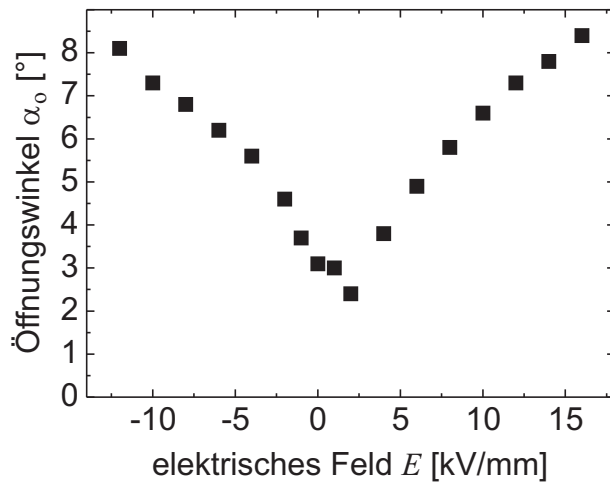


Abb. 4.25: Öffnungswinkel α_o des Fernfeld-Beugungsmusters von LiNbO_3 in Abhängigkeit vom angelegten elektrischen Feld E für die Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$.

Dafür ist der ermittelte Winkel jedoch abhängig vom gewählten Grenzwert und von der Lichtleistung des Laserstrahls.

Auch das Fernfeld-Beugungsmuster von LiTaO_3 ist abhängig von E . Abbildung 4.26 zeigt die Entwicklung des Sternmusters, wenn das angelegte elektrische Feld schrittweise von $+14 \text{ kV/mm}$ auf -8 kV/mm geändert wird. Man sieht, dass die Symmetrie des Sternmusters wechselt: von einem 3-strahligen Stern bei positiven Werten des elektrischen Feldes E zu einem 6-strahligen Stern für $E < 0$. Der Öffnungswinkel α_o des Sternmuster ist in Abb. 4.27 aufgetragen. Analog zu LiNbO_3 ändert sich die Größe des Sternmusters und durchläuft dabei ein Minimum bei $E \approx +2 \text{ kV/mm}$ (Abb. 4.26g).

Wellenlängenabhängigkeit

Die Beugungsmuster sind abhängig von der Lichtwellenlänge λ . Dies ist in Abb. 4.28 anhand der Intensitätsverteilung des Sternmusters von LiNbO_3 gezeigt. Ein größeres λ führt zu kleineren Sternen mit einer weniger ausgeprägten Unterstruktur. Das lässt sich in Abb. 4.29, in der nur die Größe des Sterns aufgetragen ist, sehr gut nachvollziehen. Dieses Verhalten ist unerwartet, da normalerweise (z. B. bei Beugung am Spalt) längere Wellenlängen stärker gebeugt werden.

Abbildung 4.30 zeigt die Wellenlängenabhängigkeit des Intensitätsprofils entlang eines Strahls für LiTaO_3 . Auch bei LiTaO_3 nimmt die Größe des Sterns bei längeren Wellenlängen ab. Die Unterstruktur ändert sich im untersuchten Wellenlängenintervall nur wenig.

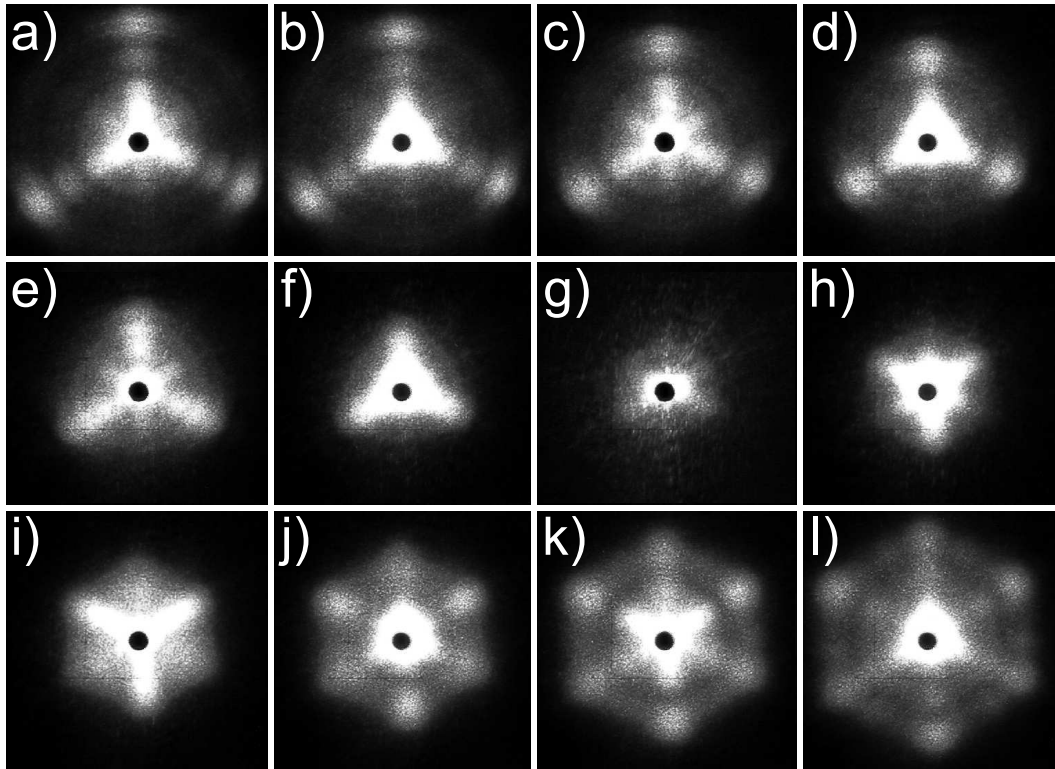


Abb. 4.26: Fernfeld-Beugungsmuster des gleichen spontanen Domänenmusters in LiTaO_3 bei unterschiedlich starken elektrischen Feldern E . Man sieht den Übergang von einem 3-strahligen zu einem 6-strahligen Stern. Die Werte für E in $[\text{kV/mm}]$ sind: a) +14; b) +12; c) +10; d) +8; e) +6; f) +4; g) +2; h) 0; i) -2; j) -4; k) -6; l) -8. Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$, alle Bilder haben den selben Maßstab.

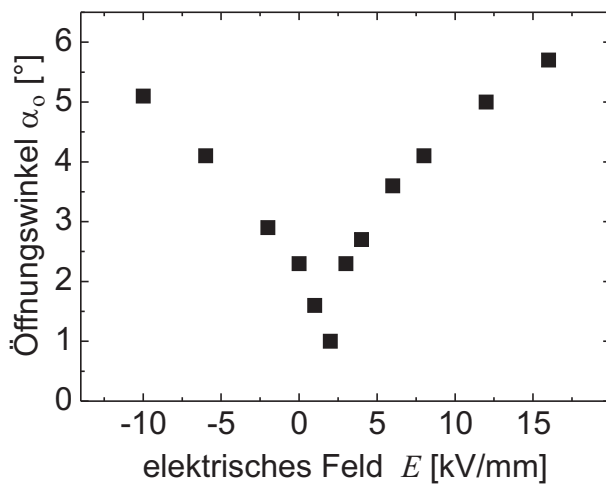


Abb. 4.27: Öffnungswinkel α_o des Fernfeld-Beugungsmusters von LiTaO_3 in Abhängigkeit vom angelegten elektrischen Feld E für die Lichtwellenlänge $\lambda = 334 \text{ nm}$.

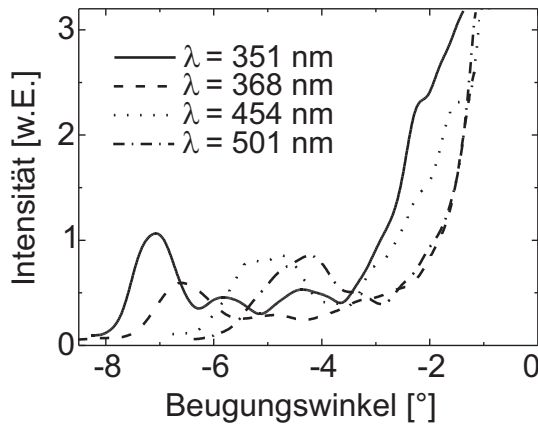


Abb. 4.28: Vergleich der Fernfeld-Beugungsmuster eines LiNbO_3 -Kristalls bei unterschiedlichen Lichtwellenlängen λ . Aufgetragen ist das Intensitätsprofil eines Strahls über dem Winkel für $E = 14 \text{ kV/mm}$.

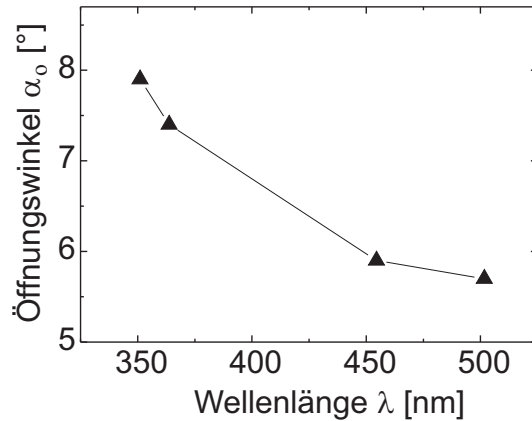


Abb. 4.29: Öffnungswinkel α_0 in Abhängigkeit von der Lichtwellenlänge λ in LiNbO_3 bei einem angelegten elektrischen Feld $E = 14 \text{ kV/mm}$. Die durchgezogene Linie dient der Führung der Augen.

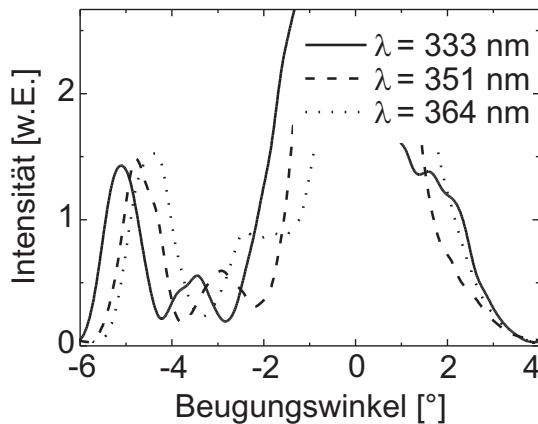


Abb. 4.30: Vergleich der Fernfeld-Beugungsmuster eines LiTaO_3 -Kristalls bei unterschiedlichen Lichtwellenlängen λ . Aufgetragen ist das Intensitätsprofil durch einen Strahl über dem Winkel für $E = 14 \text{ kV/mm}$.

Abhängigkeit von der Kristalldicke

Um die Abhängigkeit des Beugungsmusters von der Kristalldicke d zu überprüfen, werden LiNbO_3 -Kristalle in den Dicken 0.25 mm, 0.5 mm und 1 mm untersucht. Die Kristalle werden mehrmals teilweise umgepolt, und nach jedem Mal wird der Ablenkungswinkel des Hauptmaximums α_{\max} bei gleichem angelegten elektrischen Feld bestimmt. Es wird über alle Messungen gemittelt, um zu verhindern, dass die jeweils unterschiedlichen Domänenmuster die Messung verfälschen. Allerdings sind die gemessenen Abweichungen in der Größe des Beugungsmusters zwischen unterschiedlichen Polungsvorgängen sehr gering. Die so ermittelten Werte $\alpha_{\max}(d)$ sind in Abb. 4.31 aufgetragen. Die Abhängigkeit der Sterngröße von

der Kristalldicke ist gering. Eine Verdoppelung der Kristalldicke von 0.25 mm auf 0.5 mm führt nur zu einem geringfügig größeren Beugungsmuster. Eine weitere Verdoppelung von d auf 1.0 mm hat keinen Einfluss auf die Größe des Sterns.

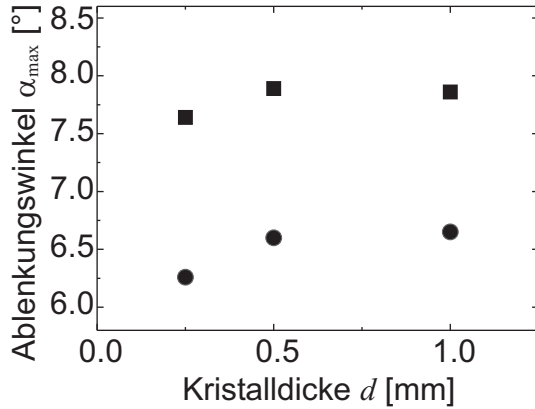


Abb. 4.31: Abhängigkeit des Ablenkungswinkels des Hauptmaximums α_{\max} von der Kristalldicke d . Gemessen für angelegte elektrische Felder $E = 16$ kV/mm (Quadrate) und $E = 8$ kV/mm (Kreise) bei der Lichtwellenlänge $\lambda = 351$ nm in LiNbO_3 .

Einfluss thermischer Behandlungen

Wie in Abschnitt 2.2.2 beschrieben, können interne elektrische Felder, wie sie nach dem Umpolen in LiNbO_3 und LiTaO_3 vorhanden sind, durch thermische Behandlungen gelöscht werden. Dadurch wird es möglich, den Einfluss dieser internen Felder auf das Beugungsmuster zu untersuchen. Abbildung 4.32 zeigt eine Messung des Öffnungswinkels eines Sternmusters über dem angelegten elektrischen Feld vor und nach einem mehrstündigen Tempern der Probe bei ≈ 250 °C. Beide Kurven zeigen die schon in Abschnitt 4.3.4 beschriebene Feldabhängigkeit mit einem deutlichen Minimum. Allerdings verschiebt sich die Lage des Minimums durch die thermische Behandlung von $E = 2$ kV/mm nach $E = 0$ kV/mm.

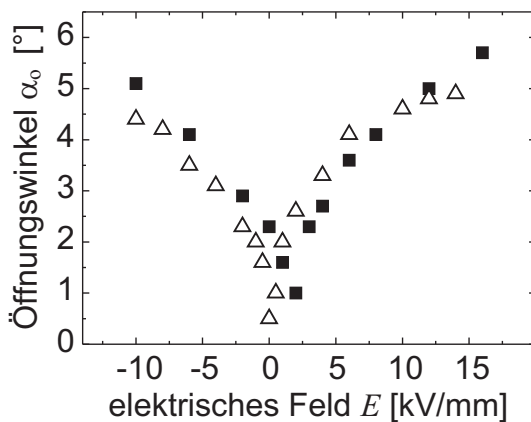


Abb. 4.32: Öffnungswinkel α_o des Fernfeld-Beugungsmuster von LiTaO_3 in Abhängigkeit vom angelegten elektrischen Feld E vor (schwarze Quadrate) und nach (Dreiecke) einer thermischen Behandlung (Tempern). Lichtwellenlänge $\lambda = 334$ nm.

Auch das Nahfeld-Beugungsmuster wird durch das Tempern beeinflusst. Nach der Behandlung befindet sich bei $E = 0$ kV/mm ein Kontrastminimum des Beugungsmusters. Das heißt, nach dem Tempern ist das Domänenmuster ohne ein externes elektrisches Feld nicht mehr zu sehen.

Abhängigkeit vom Einfallswinkel

Um die Abhängigkeit des Fernfeld-Beugungsmusters vom Einfallswinkel β untersuchen zu können, wird der Kristallhalter auf einem Rotationstisch platziert. Die Ausrichtung des Laserstrahls und des Fluoreszenzschirms wird nicht geändert. Zur Definition des Einfallswinkels β siehe Abb. 4.33.

$\beta > 0$:

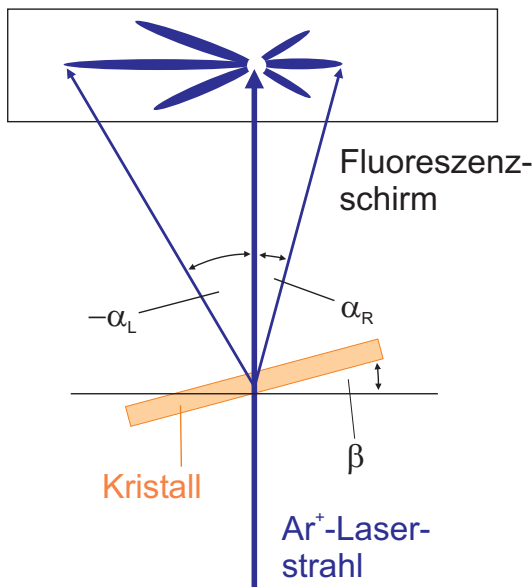


Abb. 4.33: Prinzipskizze zur Definition der Winkel in den einfallswinkelabhängigen Messungen. Der Laserstrahl und der Schirm sind ortsfest. Der Kristallhalter wird auf einem Drehtisch montiert, mit dem der Einfallswinkel β variiert wird. Für senkrechten Einfall gilt $\beta = 0$. Das Vorzeichen von β ist anhand der Zeichnung definiert: die Skizze zeigt den Fall $\beta > 0$. Die Öffnungswinkel zwischen dem transmittierten Strahl und der linken bzw. der rechten Spitze des Beugungsmuster werden mit $-\alpha_L$ und α_R bezeichnet. Dadurch hat der linke Öffnungswinkel α_L immer ein negatives und der rechte Öffnungswinkel α_R ein positives Vorzeichen.

Das Verhalten des Sternmusters bei Variation des Einfallswinkels β ist in Abb. 4.34 dargestellt. Für senkrechten Einfall erhält man das bekannte symmetrische Sternmuster. Erhöht man β , so erscheint der Stern zunehmend verzerrt, bis er schließlich nicht mehr als solcher zu erkennen ist. Es ist aber immer noch möglich, einen Öffnungswinkel für das Beugungsmuster zu bestimmen. Allerdings unterscheidet sich jetzt der „linke Öffnungswinkel“ α_L vom „rechten Öffnungswinkel“ α_R (zur genaueren Definition von α_L und α_R siehe Abb. 4.33). Die gemessenen Öffnungswinkel sind in Abb. 4.35 über dem Einfallswinkel β aufgetragen: α_L und α_R ändern sich im gemessenen Bereich ungefähr linear mit β . Der Gesamtöffnungswinkel $|\alpha_L| + |\alpha_R|$ bleibt nahezu konstant.

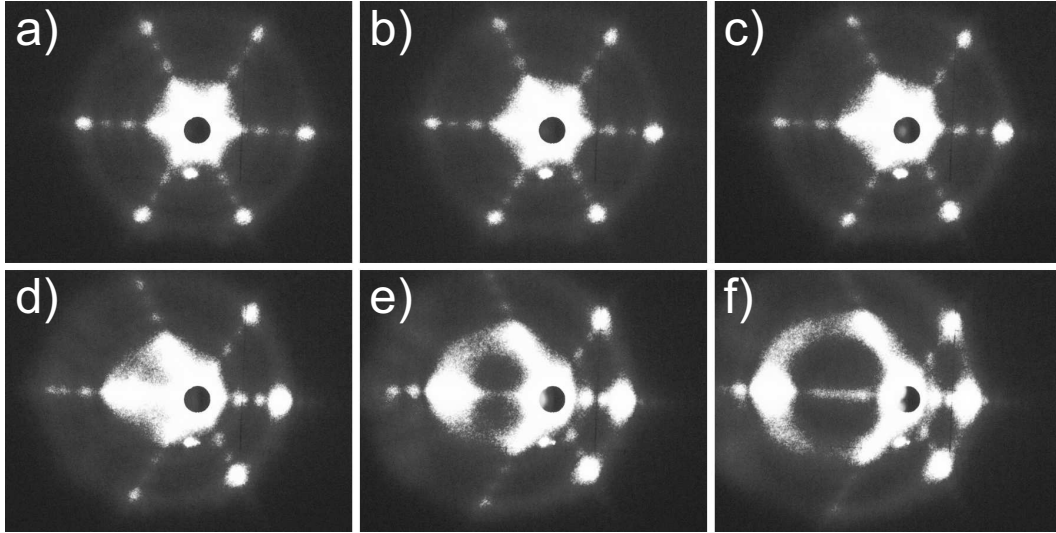


Abb. 4.34: Variation des Fernfeld-Beugungsmusters bei unterschiedlichen Einfallswinkeln. Der jeweilige Einfallswinkel β beträgt: a) 0.0° ; b) 0.5° ; c) 1.0° ; d) 2.0° ; e) 3.0° ; f) 4.0° . LiNbO_3 , Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$, angelegtes elektrisches Feld $E = 14 \text{ kV/mm}$.

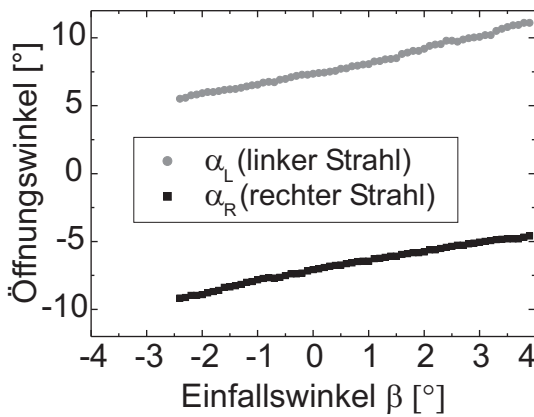


Abb. 4.35: Linker und rechter Öffnungswinkel, α_L und α_R , des Fernfeld-Beugungsmusters in Abhängigkeit vom Einfallswinkel β . LiNbO_3 , Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$, angelegtes elektrisches Feld $E = 14 \text{ kV/mm}$.

Abhängigkeit der Sternsymmetrie von der Domänengröße in LiTaO_3

Es soll untersucht werden, wie es zu dem Wechsel von einem 3-strahligen zu einem 6-strahligen Stern in LiTaO_3 kommt. Dazu werden Fernfeld- und Nahfeld-Messungen kombiniert. Zweck der Messung ist es herauszufinden, ob unabhängig von der Domänengröße immer ein 3-strahliger Stern für $E \gg 0 \text{ kV/mm}$ und ein 6-strahliger Stern für $E \ll 0 \text{ kV/mm}$ zu sehen ist.

Dazu wird der Kristall wie gewohnt mit einer Spannungsrampe gepolt. Sobald ein deutlicher Polungsstrom auftritt, wird der Polungsprozess abgebrochen. Die

entstandene Domänenstruktur wird über das Nahfeld-Beugungsmuster visualisiert, und das dazugehörige Fernfeld-Sternmuster bei $E = +14$ kV/mm und $E = -10$ kV/mm wird aufgenommen. Das unvollständige Umpolen mit der anschließenden Beobachtung der Beugungsmuster wird so lange wiederholt, bis der Bereich unter den Elektroden erneut eindomänig ist. Da bei jedem Polungsprozess die Domänen durch Domänenwandbewegung wachsen, wird sich die mittlere Domänengröße während des Experiments in kleinen Schritten erhöhen.

Abbildung 4.36 zeigt die so entstandenen Domänenstrukturen mit den dazugehörigen Sternmustern. Der Vergleich der Domänenmuster (Abb. 4.36C) zeigt, dass die mittlere Domänengröße tatsächlich wie erwartet mit jedem Polungsschritt zunimmt. Man sieht auch, dass für die kleinste mittlere Domänengröße (Abb. 4.36-1) der Unterschied im Sternmuster zwischen positivem (Abb. 4.36A) und negativem (Abb. 4.36B) elektrischen Feld am ausgeprägtesten ist: Je nach Vorzeichen von E erhält man ein eindeutig 3- oder 6-strahliges Sternmuster. Bei nachfolgenden Polungsprozessen verlieren drei Strahlen des 6-strahligen Sternmusters schrittweise an Intensität. Das 3-strahlige Sternmuster entwickelt dagegen drei zusätzliche, schwache Strahlen. Bei dem zu 67% gepolten Kristall (Abb. 4.36-4) sind die Sternmuster für $E = +14$ kV/mm und $E = -10$ kV/mm praktisch deckungsgleich. Allerdings sind die Sterne nicht identisch, sondern um einen 60° -Winkel gegeneinander gedreht. Man sieht auch, dass bei LiTaO_3 die Strahlen unabhängig von der Domänengröße immer relativ unscharf sind (vgl. z. B. mit LiNbO_3 in Abb. 4.22b).

4.3.5 Dynamik des Fernfeld-Beugungsmusters während des Polens

Fernfeld-Beugungsmuster sind nicht auf statische, eingefrorene Domänenmuster beschränkt, sondern können auch bereits während des Umpolens beobachtet werden. Abbildung 4.37 zeigt Momentaufnahmen des Fernfeld-Beugungsmusters für LiNbO_3 während des Umpolens mit der Spannungsrampe. Anfangs wird kein Licht gebeugt (Abb. 4.37a). Wenn sich das angelegte elektrische Feld E dem Koerzitivfeld nähert und ein messbarer Polungsstrom auftritt, erscheinen sechs Punkte in einer hexagonalen Anordnung unter einem Ablenkungswinkel von ca. 8° vom Hauptstrahl (Abb. 4.37b). Die Punkte sind durch einen schwach sichtbaren Ring verbunden. Bei fortschreitender Umpolung entwickeln sich die Punkte zu dem bereits bekannten Sternmuster mit einer deutlichen Unterstruktur in den Strahlen (Abb. 4.37c). Die Strahlen werden zunehmend schärfer, während der Ring und die Unterstruktur verschwinden (Abb. 4.37d). Das Sternmuster verblasst abrupt gegen Ende des Umpolens. Gleichzeitig zeigt der Polungsstrom den schon bekannten starken Abfall (vgl. Abschnitt 3.3.1).

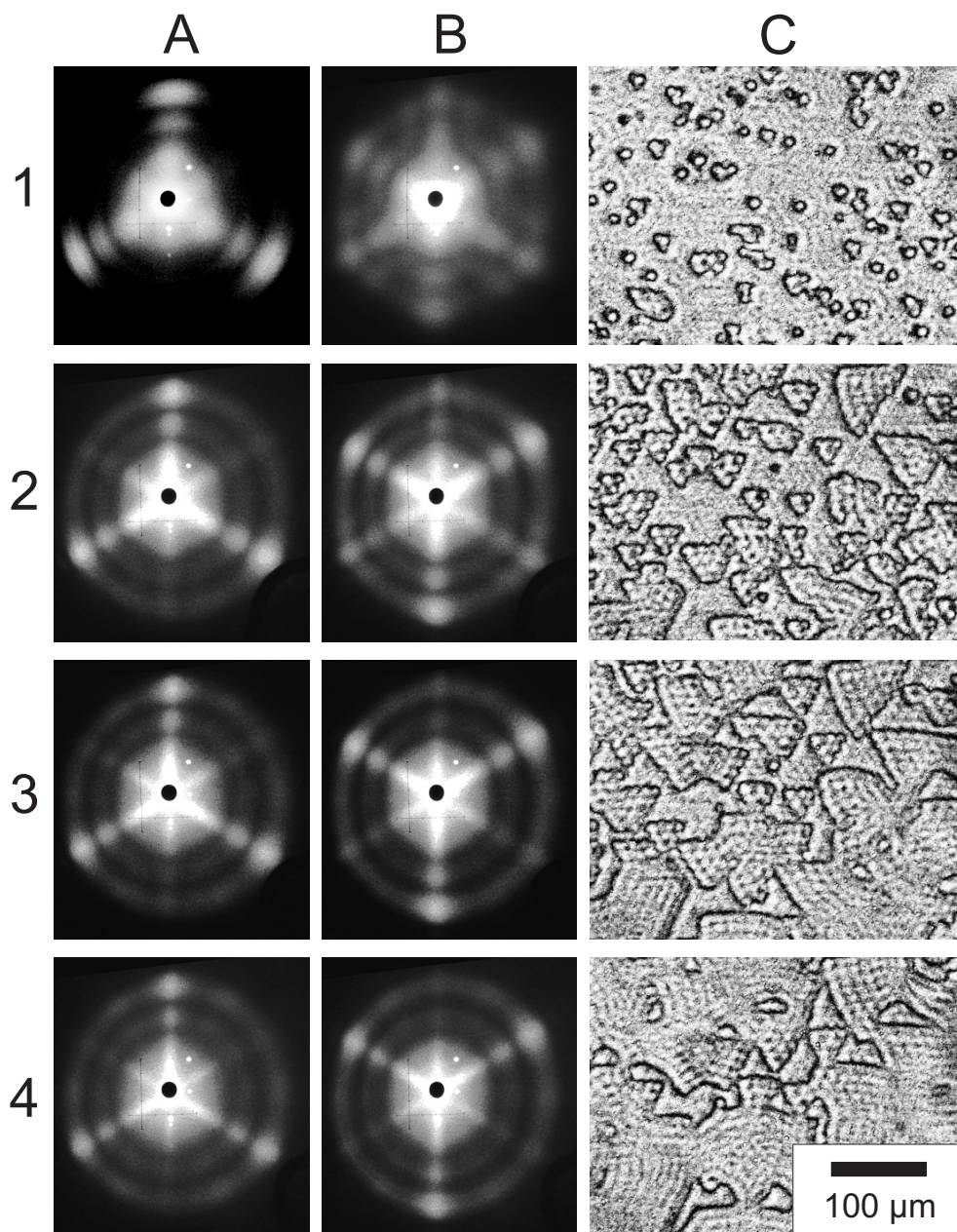


Abb. 4.36: Spalten A und B: Fernfeld-Beugungsmuster eines teilgepolten LiTaO_3 -Kristalls bei einem angelegten Feld von $E = +14 \text{ kV/mm}$ (A) bzw. $E = -10 \text{ kV/mm}$ (B). Spalte C: Nahfeld-Visualisierung des dazugehörigen Domänenmusters. Die Reihen entsprechen unterschiedlichen Domänenmustern mit unterschiedlichen mittleren Domänengrößen. Die Probe ist dabei jeweils zu 8% (1), zu 34% (2), zu 53% (3) und zu 67% (4) zurückgepolnt (gemessen über den beim Polen bereits geflossenen Anteil der Kompensationsladungen).

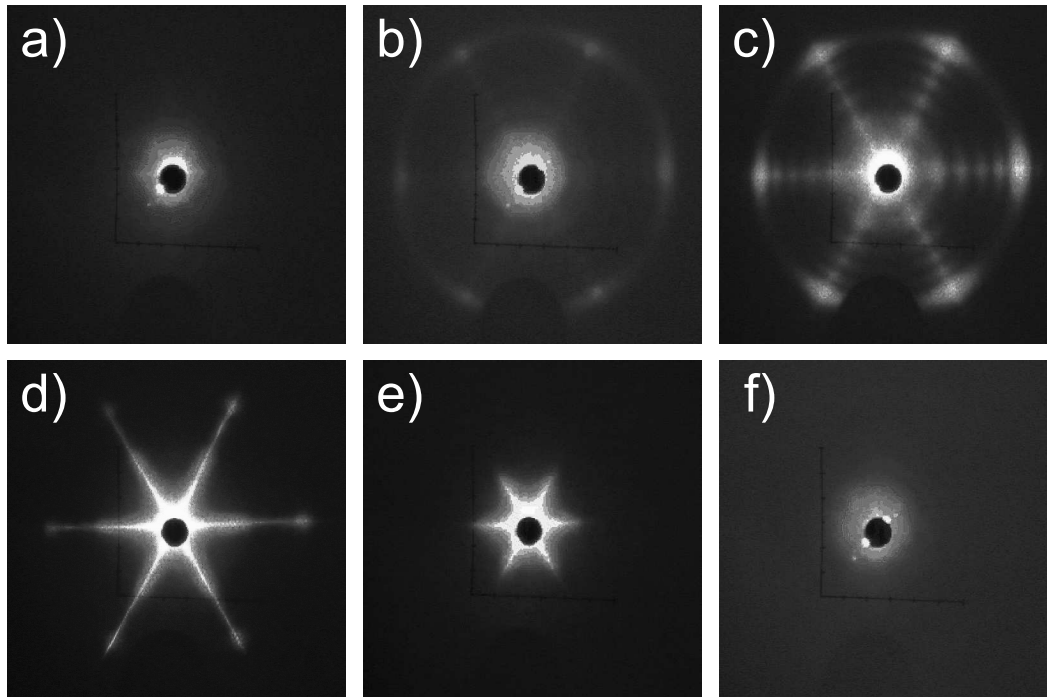


Abb. 4.37: Typische Fernfeld-Lichtmuster, wie sie beim Umpolen eines LiNbO_3 -Kristalls mit einer Spannungsrampe sichtbar sind. Die angelegten Felder in $[\text{kV}/\text{mm}]$ sind: a) 19.08; b) 19.30; c) 19.53; d) 19.67; e) 19.69; f) 21.6. Der Ablenkungswinkel der 6 Punkte in b) beträgt 8° . Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$, alle Bilder haben den gleichen Maßstab.

Abbildung 4.38 zeigt im Vergleich dazu, das Fernfeld-Beugungsmuster während des Umpolens von LiTaO_3 . Bei niedrigen Spannungen sieht man keine Beugungsmuster. Nähert sich das angelegte elektrische Feld der Koerzitivfeldstärke, erscheinen als erstes drei Kreisbögen (Abb. 4.38a). Die Bögen verbinden sich und formen ein Ringmuster (Abb. 4.38b). Von diesem Punkt an wird ein merklicher Polungsstrom gemessen. Die Ringe entwickeln sich zu einer Art „Rad“ mit drei „Speichen“ (Abb. 4.38c) und schließlich zu dem bereits bekannten 3-strahligen Stern (Abb. 4.38d). Interessanterweise verlaufen die Strahlen des Sterns in einem 60° -Winkel zu den ursprünglichen Kreisbögen. Wie in LiNbO_3 verschwindet der Stern beim letzten Abfall des Polungsstroms. Allerdings bleibt ein kleines Dreieck noch länger sichtbar (Abb. 4.38e). Schließlich verschwindet auch das Dreieck (Abb. 4.38f).

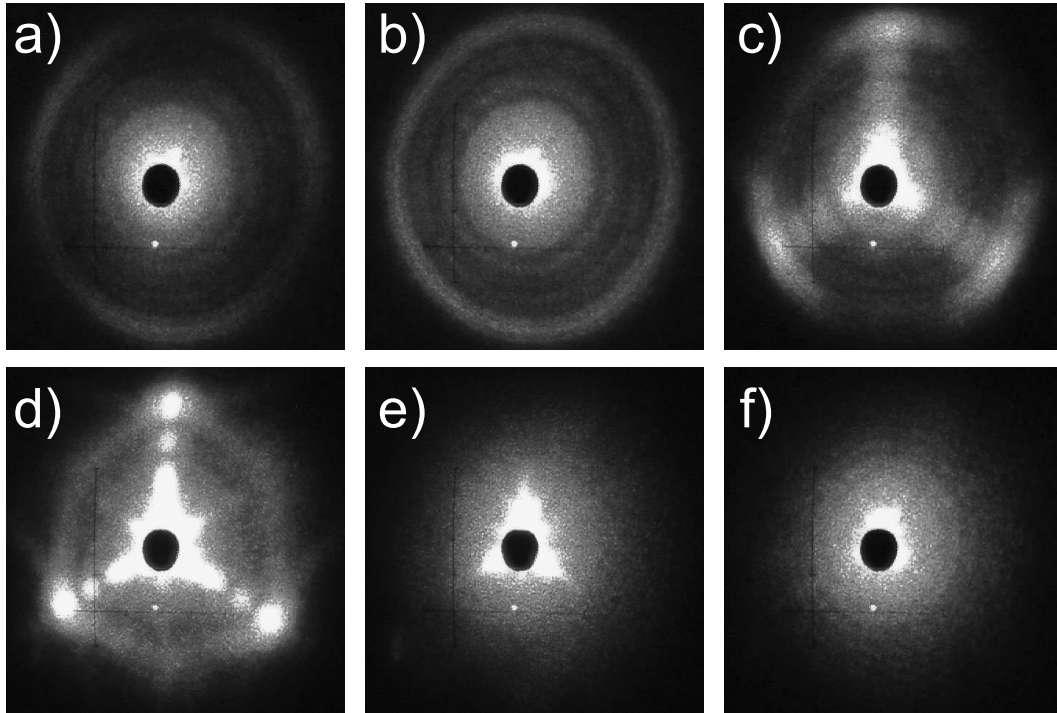


Abb. 4.38: Typische Fernfeld-Lichtmuster, wie sie beim ersten Umpolen eines LiTaO_3 -Kristalls mit einer Spannungsrampe sichtbar sind. Die angelegten Felder in $[\text{kV/mm}]$ sind: a) 19.1; b) 19.8; c) 20.0; d) 20.4; e) 20.8; f) 21.6. Der Ablenkungswinkel des äußeren Rings in b) beträgt 6.7° . Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$, alle Bilder haben den gleichen Maßstab.

Das Fernfeld-Beugungsmuster bei kurzen UV-Wellenlängen

Bislang wurden für LiNbO_3 nur Beugungsmuster mit Wellenlängen $\lambda \geq 351 \text{ nm}$ untersucht. Wie in Abschnitt 4.2.3 gezeigt, ist aber gerade Licht der Wellenlänge $\lambda = 334 \text{ nm}$ interessant, da es das Koerzitivfeld beeinflussen kann.

Um die entsprechenden Fernfeld-Beugungsmuster zu untersuchen, wird der Messaufbau aus Abb. 3.8a verwendet. Als Lichtquelle dient der unaufgeweitete Strahl des Ar^+ -Lasers mit einer Leistung von $P = 200 \text{ mW}$ bei $\lambda = 334 \text{ nm}$. Die Probe wird bei konstanter Beleuchtung hin- und zurückgepolt. Abbildung 4.39 zeigt die Entwicklung der Fernfeld-Beugungsmuster über drei Polungszyklen.

Während des 1. Polungszyklus sieht man das bekannte Sternmuster (Abb. 4.39a). Aber schon während des darauf folgenden Zyklus tauchen im Sternmuster zusätzliche Strahlen mittig zwischen den „regulären“ Strahlen auf (Abb. 4.39b). Gleichzeitig nimmt das Streulicht während und nach dem Polen deutlich zu. Beim 3. Vorwärtspolen ist das ursprüngliche Sternmuster verschwunden. Statt

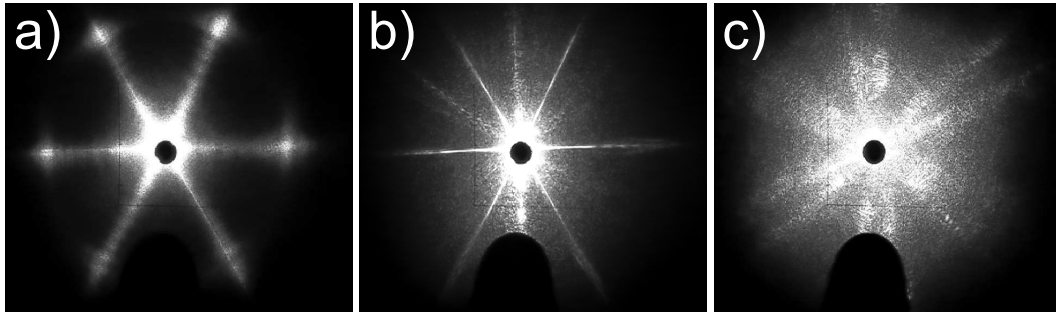


Abb. 4.39: Fernfeld-Beugungsmuster während des Umpolens bei Beleuchtung einer LiNbO_3 -Probe mit intensivem UV-Licht der Wellenlänge $\lambda = 334 \text{ nm}$. Die Fotos zeigen das jeweilige Lichtmuster während des 1. Rückwärtspolens (a), während des 2. Rückwärtspolens (b) und während des 3. Vorwärtspolens (c).

dessen erkennt man ein unklar definiertes Muster mit 6 Doppelstrahlen, welche ungefähr im 30° -Winkel zu den ursprünglichen Strahlen verlaufen.

Nach diesem Umpolvorgang wird der Laser ausgeschaltet. Ein weiterer Polungsvorgang ohne Beleuchtung wird abgebrochen, so dass man einen teilgepolten Kristall erhält. Abbildung 4.40 zeigt den Auftreffpunkt des Laserstrahls auf der Probe nach dem Ätzen. Man sieht ein völlig unregelmäßiges Muster. Ausgezeichnete Richtungen sind nicht zu erkennen.

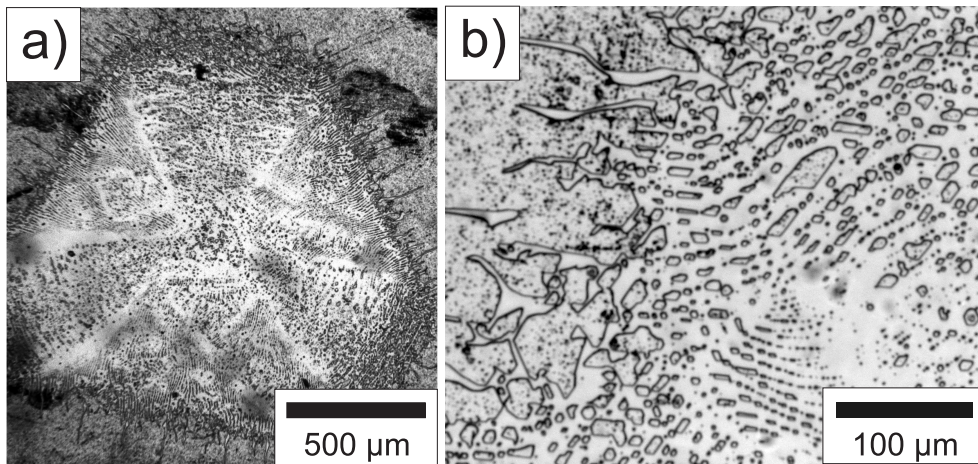


Abb. 4.40: Domänenmuster der Probe aus Abb. 4.39, durch Ätzen in Flusssäure sichtbar gemacht. a) Auftreffpunkt des Laserstrahls b) Detailvergrößerung vom Rand des Auftreffpunktes.

5 Diskussion

Die Ergebnisse werden weitgehend in der Reihenfolge ihrer Präsentation im vorherigen Kapitel diskutiert. In einem abschließenden Fazit werden die entwickelten Methoden zur lichtdefinierten Domänenstrukturierung und zur Visualisierung von Domänenmustern kurz bewertet.

5.1 Umpolen ohne Beleuchtung

Als erstes werden die erzielten Resultate zum Umpolen ohne Beleuchtung diskutiert. Diese Ergebnisse liefern nicht nur wichtige Erkenntnisse über das Polungsverhalten der Proben, sondern erlauben auch eine Bewertung des verwendeten Versuchsaufbaus und der eingesetzten Messmethoden.

Koerzitivfeldstärke und Polungsqualität

Zur Kontrolle des Polungsprozesses und zur Bestimmung der Koerzitivfeldstärke sind zwei verschiedene Verfahren vorgestellt worden: die Messung des Polungsstroms und der Nachweis der Brechungsindexänderungen im Interferometer. Der Vergleich der beiden Methoden (Abb. 4.1 und Tabelle 4.1) zeigt deutlich die schon in Abschnitt 3.3.2 beschriebene systematische Abweichung in den Messwerten. Davon abgesehen, zeigen die untersuchten Proben das aus der Literatur bekannte Verhalten [32, 41]: Für die erste Umpolung ist die Koerzitivfeldstärke E_C^{V1} am höchsten, bei nachfolgenden Polungsprozessen misst man weitgehend konstante Koerzitivfelder für die Vorwärts- und für die Rückwärtsrichtung, $E_C^{V\infty}$ und $E_R^{V\infty}$. Zusätzlich ergeben die Messungen vergleichsweise starke Schwankungen bei der Koerzitivfeldstärke für das erste Rückwärtspolen E_C^{R1} . Auch die Beträge der gemessenen Koerzitivfelder stimmen gut mit den Literaturwerten für kongruent schmelzende Kristalle überein. Nach Gl. 2.7 lässt sich aus den Koerzitivfeldern das interne Feld E_{int} bestimmen. Man erhält $E_{\text{int}} = 2.3 \text{ kV/mm}$ für LiNbO_3 (für beide Messmethoden) und $E_{\text{int}} = 3.6 \text{ kV/mm}$ für LiTaO_3 .

Die Wiederholgenauigkeit beider Methoden ist sehr gut. So liegt die Standardabweichung des Koerzitivfeldes bei der Messung in Abb. 4.1 jeweils unter 40 V/mm , also bei weniger als 0.2% . Ob es sich dabei um Messungenauigkeiten oder um einfache statistische Schwankungen von Polungszyklus zu Polungszyklus handelt, wurde nicht untersucht. In jedem Fall sind beide Methoden genau genug, um jede signifikante Änderung der Koerzitivfeldstärke zu registrieren. Es kann also je nach Bedarf die geeignetere Methode verwendet werden. So ist der interferometrische Aufbau besser, wenn räumlich aufgelöste Informationen benötigt werden, bzw. wenn der Polungsvorgang visualisiert werden soll. Die Messung über den Polungsstrom hat dagegen den Vorteil des einfacheren Aufbaus, insbesondere wenn

nur über den Kristall integrierte Informationen gefragt sind. Beim Vergleich von Koerzitivfeldstärken ist allerdings zu beachten, dass nicht nur die Messwerte für die beiden Methoden systematisch von einander abweichen, sondern dass auch unterschiedliche Polungsrampen und der verwendete Schutzwiderstand die Messwerte beeinflussen können.

Eine weitere wichtige Erkenntnis ist, dass der entwickelte Halter das wiederholte Polen der Proben ohne wesentliche Qualitätseinbußen erlaubt. Zwar zeigt Abb. 4.2b nach über 100 Polungsvorgängen eine deutliche Erhöhung der Spannungsdoppelbrechung, die auf eine Verschlechterung der Kristallqualität hinweist. Allerdings beschränkt sich dieser Effekt hauptsächlich auf den Rand des gepolten Bereiches und auf die Fläche unter den O-Ringen, also auf Bereiche in denen vermutlich stark inhomogene elektrische Felder vorherrschen. Problematischer erscheinen einige größere Polungsdefekte im Bereich der Flüssigelektroden, die aber lokal begrenzt sind. Der überwiegende Teil des gepolten Bereiches zeigt nach dieser Messmethode nur eine geringe Verschlechterung der optischen Qualität.

Schnelle Relaxation des Koerzitivfeldes

Die untersuchten Proben zeigen eine deutlich messbare Reduktion des Koerzitivfeldes direkt nach einem Polungsvorgang. Dabei lässt sich der gemessene Verlauf der Koerzitivfeldstärke E_C über der Zeit t_w seit dem vorhergehenden Polungsvorgang nach dem Vorbild anderer Veröffentlichungen [35, 62] mit einer einfach exponentiellen Funktion gemäß:

$$E_C = E_C^{t_w=\infty} - E_1 e^{-t_w/\tau} \quad (5.1)$$

beschreiben. Dabei sind die Relaxationskonstante τ sowie die elektrischen Felder $E_C^{t_w=\infty}$ und E_1 freie Parameter. Entsprechende Anpassungen an die Messwerte sind in Abb. 4.4 als durchgezogene Linien eingezeichnet. Die gewonnenen Anpassungsparameter fasst Tabelle 5.1 zusammen.

Polungsrichtung	$E_C^{t_w=\infty}$ [kV/mm]	E_1 [kV/mm]	τ [s]
Vorwärts	20.0	0.77	27
Rückwärtswärts	15.7	0.62	39

Tab. 5.1: Parameter aus der Anpassung von Gl. 5.1 an die Daten aus Abb. 4.4.

Mit Relaxationskonstanten von $\tau = 27$ s in Vorwärts- und $\tau = 39$ s in Rückwärtsrichtung zeigt LiNbO_3 ein sehr viel schnelleres Relaxationsverhalten als LiTaO_3 (Relaxationskonstante $\tau \approx 400$ s [36]). Literaturwerte für die schnelle Relaxation von LiNbO_3 sind inkonsistent. So berichten Wang et al. über nahezu doppelt so

große Zeitkonstanten beim Umpolen mit Spannungspulsen [62], während Ro et al. einen gestreckt exponentiellen Verlauf für das Relaxationsverhalten finden [44]. Ein Problem der hier vorliegenden Messungen ist, dass das verwendete Hochspannungsnetzteil keine kurzen Wartezeiten zulässt. Bei der minimal messbaren Wartezeit $t_w \approx 30$ s ist die Relaxation des Koerzitivfeldes schon zu mehr als 98% abgeschlossen. Um in den interessantesten Zeitbereich direkt nach dem Umpolen vorzustößen, wird es notwendig sein, eine schnelle Spannungsquelle (z. B. einen Hochspannungsverstärker) zu verwenden und die Steigung der Polungsrampen zu erhöhen.

Domänenmuster

Die Messungen an LiNbO_3 zeigen für große Domänenstrukturen, dass die Domänenwände strikt entlang von drei Vorzugsrichtungen im Kristall verlaufen (siehe z. B. Abb. 4.5a). Erst bei sehr kleinen und sehr langen PPLN-Strukturen erkennt man, dass geringe Abweichungen vom geraden Verlauf auftreten können (Abb. 4.6). Im Gegensatz dazu sind die Domänenwände in den LiTaO_3 -Proben zwar auch grundsätzlich entlang von drei Vorzugsrichtungen orientiert, sie nehmen aber keinen geraden sondern einen deutlich gebogenen Verlauf (Abb. 4.5b).

5.2 Lichteinfluss auf den Polungsprozess

Die drei untersuchten Einflüsse von Licht auf den Polungsprozess, (thermisch, über die schnelle Relaxation und durch intensive UV-Beleuchtung) werden im Folgenden besprochen und bezüglich ihrer Eignung für die lichtdefinierte Erzeugung von Domänenstrukturen bewertet.

5.2.1 Thermische Einflüsse

Die Versuche zeigen, dass thermische Effekte durch Absorption von Licht die Koerzitivfeldstärke von LiNbO_3 herabsetzen können. Dies gilt insbesondere für UV-Licht, welches vom Kristall stärker absorbiert wird als sichtbares Licht (siehe Abb. 3.1).

Generell gilt aber, dass auf Grund der nicht unerheblichen Wärmeleitfähigkeit in LiNbO_3 von ca. $4 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ bei Raumtemperatur [63] im thermischen Gleichgewicht keine scharf abgegrenzten Temperaturbereiche existieren. Auch wenn der Kristall mit einem klar strukturierten Lichtmuster beleuchtet wird, ist die Koerzitivfeldänderung über vergleichsweise große Kristallbereiche verteilt. Die Erzeugung kleiner Domänenstrukturen über die lichtdefinierte thermische Beeinflussung der Koerzitivfeldstärke ist daher höchstens mit Laserpulsen weit entfernt vom thermischen Gleichgewicht denkbar. Allerdings ist Absorption und die da-

mit verbundene Erwärmung auch nicht ganz vermeidbar. Man beobachtet den thermischen Effekt deshalb als kleine Störung bei allen Polungsprozessen unter Beleuchtung.

5.2.2 Schnelle Relaxation des Koerzitivfeldes

Es konnte keine Beeinflussung der schnellen Relaxation von LiNbO_3 durch Beleuchtung nachgewiesen werden, weder für sichtbares (Wellenlänge $\lambda = 532$ nm, Abb. 4.7b) noch für ultraviolettes Licht ($\lambda = 351$ nm, Abb. 4.7a). Damit konnte der vom isomorphen LiTaO_3 bekannte Effekt [35, 45] in LiNbO_3 nicht nachgewiesen werden. Mögliche Gründe dafür sind:

- Der Effekt ist in LiNbO_3 zu schnell, um mit dem vorhandenen Aufbau detektiert zu werden: Wie oben beschrieben verläuft die Relaxation in LiNbO_3 sehr viel schneller als in LiTaO_3 . Da der Aufbau die minimal messbare Wartezeit $t_w \approx 30$ s vorgibt, ist die Relaxation bei der Messung schon nahezu abgeschlossen. Ein schwacher lichtinduzierter Effekt kann dadurch eventuell nicht nachgewiesen werden.
- Der Effekt in LiTaO_3 wird von Verunreinigungen verursacht: Leider lassen die Veröffentlichungen zur Beeinflussung der schnellen Relaxation durch Beleuchtung [18, 45] keine Rückschlüsse auf die Qualität der verwendeten LiTaO_3 -Proben zu. Dies wäre von speziellem Interesse, da schon geringe Verunreinigungen die optischen Eigenschaften der verwendeten Proben stark beeinflussen können [21]. So verändern schon kleine Mengen an Eisen- oder Kupfer-Ionen Kristalleigenschaften wie Absorption und Photoleitfähigkeit, die für die Reaktion des Kristalls auf Beleuchtung von großer Wichtigkeit sind. Ob und inwieweit solche Verunreinigungen hinter der lichtinduzierten Beschleunigung der Relaxation in LiTaO_3 stehen, ist nicht bekannt. Klarheit würde hier nur eine systematische Untersuchung wirklich vergleichbarer LiNbO_3 - und LiTaO_3 -Proben schaffen.
- Der Effekt tritt in LiNbO_3 im Gegensatz zu LiTaO_3 nicht auf.

Da in den untersuchten LiNbO_3 -Proben kein Einfluss des Lichts auf die schnelle Relaxation gemessen werden konnte, ist dieses Verfahren für die lichtdefinierte Erzeugung ferroelektrischer Domänenstrukturen in LiNbO_3 nicht geeignet.

Ein interessantes zusätzliches Ergebnis ist, dass die Zerstörschwelle der LiNbO_3 -Kristalle für gepulstes UV-Licht während des Umpolens sinkt. LiNbO_3 ist also während eines Polungsvorgangs gegenüber UV-Beleuchtung empfindlicher. Es ist bekannt, dass Streuzentren und andere Kristalldefekte die Zerstörschwelle von LiNbO_3 verringern [64]. Daher ist es wahrscheinlich, dass die Domänenwände und die auftretenden inneren Spannung für die erhöhte Empfindlichkeit der Proben während des Umpolens verantwortlich sind.

5.2.3 Einfluss intensiven UV-Lichts auf den Polungsprozess

Die Messung des Koerzitivfeldes in Abb. 4.8 zeigt zwei verschiedene Auswirkungen der intensiven UV-Beleuchtung: ein geringes temporäres Absinken der Koerzitivfeldstärke bei Beleuchtung mit der Lichtwellenlänge $\lambda = 351$ nm und eine starke, permanente Verringerung des Koerzitivfeldes bei Beleuchtung mit $\lambda = 334$ nm. Während sich ersteres auf Erwärmung durch Absorption des UV-Lichts zurückführen lässt (vgl. Abschnitt 5.2.1), scheint es sich bei letzterem um einen neuen, bislang noch nicht untersuchten Effekt zu handeln. Erwärmung kann jedenfalls ausgeschlossen werden, da die Koerzitivfeld-Änderung auch noch eine Stunde nach der Beleuchtung bestehen bleibt.

Kennzeichnend für den Effekt ist, dass er Beleuchtung *während* des Umpolens benötigt und dabei stark von der Wellenlänge λ abhängt: Licht mit $\lambda = 334$ nm bewirkt eine permanente Koerzitivfeldänderung, nicht jedoch Licht mit $\lambda \geq 351$ nm. Es ist unwahrscheinlich, dass dies nur auf die höhere absorbierte Lichtleistung zurückgeführt werden kann. Zwar steigt der Lambert-Beer'sche Absorptionskoeffizient von $\alpha_{\text{LB}} = 67 \text{ m}^{-1}$ bei $\lambda = 351$ nm auf $\alpha_{\text{LB}} = 203 \text{ m}^{-1}$ bei $\lambda = 334$ nm. Allerdings bewirkt beispielsweise die Verdoppelung der Lichtintensität bei $\lambda = 351$ nm von $I = 3 \text{ W/cm}^2$ auf $I = 6 \text{ W/cm}^2$ keine vergleichbare Koerzitivfeldänderung. Daher ist zu vermuten, dass Beleuchtung bei $\lambda = 334$ nm auch qualitativ andere Auswirkungen hat als bei $\lambda = 351$.

Ein solcher qualitativer Unterschied zwischen den Wellenlängen könnte in der Art der Absorption liegen. Für die Absorption bei $\lambda = 351$ nm sind wahrscheinlich primär Eisen-Störstellen im Kristall verantwortlich. Es ist bekannt, dass Licht im Wellenlängenbereich von 300 nm bis 360 nm (mit einem Absorptionsmaximum bei ≈ 320 nm) Elektronen aus dem Valenzband in Fe^{3+} -Störstellen anregt [65]. Zwar sind die untersuchten Proben nominell eisenfrei, es wurde aber gezeigt, dass auch undotierte LiNbO_3 -Kristalle im Allgemeinen geringe Eisenverunreinigungen aufweisen, die für eine schwache Absorptionsbande ausreichen [66].

Ein anderer möglicher Absorptionsmechanismus ist die optische Anregung von Elektronen aus dem Valenzband in die Niob-auf-Lithium-Platz-Störstellen (Nb_{Li}), wo sie ein so genanntes *kleines Polaron* bilden. Da ein Niob-Ion mit einer Ladung von $5+$ ein Lithium-Ion (Ladung $1+$) substituiert, besitzen diese Störstellen eine lokale Ladung von $4+$. Nach einer überzeugenden Theorie von Gopalan et. al. [67] spielt diese Ladung eine entscheidende Rolle bei der Stabilisierung der ferroelektrischen Domänen und für die Höhe des Koerzitivfeldes. Demnach würde die Anregung von Elektronen in diese Störstellen und die damit verbundene Reduktion der lokalen Ladung von $4+$ auf $3+$ den Stabilisierungsmechanismus deutlich schwächen. Eine optische Anregung von Polaronen könnte also die Abnahme des Koerzitivfeldes erklären. Allerdings ist für LiNbO_3 eine direkte Anregung von kleinen Polaronen aus dem Valenzband in der Literatur noch nicht beschrieben worden (im Gegensatz zu Anregungen aus anderen Störstellen). Daher ist auch

die genaue optische Anregungsenergie nicht bekannt, und auf Grund der Franck-Condon-Verschiebung kann sie auch nicht direkt aus der bekannten Anregungsenergie eines kleinen Polarons aus einer Eisen-Störstelle heraus berechnet werden. Da Polaronen energetisch unterhalb des Valenzbandes liegen, erscheint aber eine Lichtwellenlänge von $\lambda = 334$ nm (bei einer Bandkante von ≈ 315 nm) als ein möglicher Kandidat für die Erzeugung von kleinen Polaronen. Jedoch ist die Lebensdauer der kleinen Polaronen nur kurz. In eisendotiertem LiNbO_3 wurden Lebensdauern bis zu einigen Millisekunden gemessen [68]. Demnach kann zwar der starke Abfall des Koerzitivfeldes während des Umpolens erklärt werden, nicht aber die Tatsache, dass eine deutliche Koerzitivfeldänderung nach dem Ende der Beleuchtung zurück bleibt.

Eine alternative Erklärung wäre, dass das UV-Licht ab einer bestimmten Mindestenergie andere Defekte erzeugen kann, welche die Bildung von Polungskeimen erleichtern und damit ein Domänenwachstum bei niedrigeren elektrischen Feldern ermöglichen. Dies wäre in Übereinstimmung mit dem Ergebnis aus dem vorhergehenden Abschnitt, dass die Kristalle während des Umpolens besonders empfindlich auf UV-Beleuchtung reagieren. Entsprechend sollte die Wahrscheinlichkeit, dass Licht Defekte erzeugen kann, während eines Polungsvorgangs steigen. Dieser Ansatz könnte auch das Fehlen von Datenpunkten in Abb. 4.8 während der letzten Beleuchtungsphase erklären: Wenn das UV-Licht signifikant mehr Polungskeime erzeugt, erhält man während der frühen Phasen des Polungsprozesses mehr aber dafür kleinere Domänen, die unterhalb der räumlichen Auflösung des interferometrischen Aufbaus zur Bestimmung der Koerzitivfeldstärke liegen. Dieser Mechanismus würde auch erklären, dass nach dem Ende der Beleuchtung eine deutliche Koerzitivfeldänderung verbleibt. Zusätzliche Untersuchungen werden notwendig sein, um eine definitive Erklärung für die lichtinduzierte Koerzitivfeldänderung zu finden.

Der Versuch mit der Beleuchtung durch die Maske zeigt, dass es möglich ist, den obigen Effekt zur lichtdefinierten Erzeugung von Domänenmustern zu benutzen: Die entstandenen Domänen (Abb. 4.9–4.10) zeigen die gleichen Strukturen wie das Lichtmuster (Abb. 3.4). Allerdings besteht das Domänenmuster aus einzelnen hexagonalen Domänen statt aus einheitlichen Streifen. Das deutet darauf hin, dass der letzte Polungsvorgang zu früh abgebrochen wurde, bevor die einzelnen Domänen zu Streifen verschmelzen konnten. Um qualitativ hochwertige Domänenmuster herzustellen, wird es deshalb notwendig sein, das Domänenmuster während des Umpolens zu überwachen. Dadurch sollte es möglich sein, den Polungsprozess zum richtigen Zeitpunkt zu unterbrechen: nachdem die gewünschten Strukturen umgepolt wurden, aber vor dem Verschmelzen der einzelnen Strukturen zu einer großen Domäne.

Weitere Untersuchungen z. B. zur Intensitätsabhängigkeit und zur genaueren Wellenlängenabhängigkeit des Effekts werden notwendig sein, um das volle Potential dieses neuen Verfahrens auszuloten. Trotzdem erscheint die hier vor-

gestellte Methode als vielversprechend, insbesondere für die Herstellung von kleinen Domänenstrukturen. So ist es schon bei ersten Versuchen gelungen, Domänenstrukturen mit einer Periodenlänge zu erzeugen, die nur einen Faktor 2 über den kleinsten, mit der Methode der strukturierten Elektroden hergestellten [48], liegen. Passende Techniken zur Überwachung des Umpolvorgangs werden im Folgenden besprochen.

5.3 Visualisierung von Domänen im Nahfeld

In diesem und im folgenden Abschnitt sollen die Beugungsmuster, die hinter teilgepolten Kristallen im Nah- und im Fernfeld zu beobachten sind, erklärt werden. Von allen untersuchten Beugungsmustern ist nur die Intensitäts- nicht jedoch die Phasenverteilung bekannt. Daher ist es nicht möglich aus dem Beugungsmuster auf die Lichtwelle direkt hinter dem Kristall zurückzurechnen. Der Einfluss von ferroelektrischen Domänen auf transmittiertes Licht kann also nicht einfach aus dem Vergleich der Wellenfront direkt vor und direkt hinter dem Kristall abgelesen werden. Deshalb wird hier der umgekehrte Weg beschritten: Unter Berücksichtigung der bekannten Eigenschaften von ferroelektrischen Domänen wird ein Modell für das Phasen- und das Intensitätsprofil der Lichtwelle direkt hinter dem Kristall aufgestellt. Der Vergleich der aus diesem Modell berechneten mit den gemessenen Beugungsmustern liefert ein Maß für die Qualität des Modells.

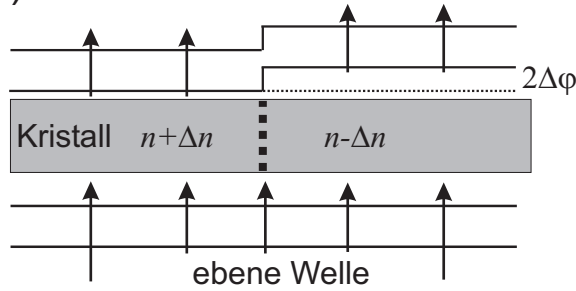
Die Sichtbarkeit der ferroelektrischen Domänengrenzen von LiNbO_3 und LiTaO_3 im Nahfeld-Beugungsmuster lässt sich wie folgt erklären: Der lineare elektrooptische Effekt bewirkt bei einem angelegten elektrischen Feld E eine Brechungsindexänderung Δn_o gemäß Gl. 2.1. Da das Vorzeichen des entsprechenden Elementes des elektrooptischen Tensors r_{113} von der Domänenorientierung abhängt, tritt an der Domänenwand ein Brechungsindexsprung $2\Delta n_o$ auf. Eine entlang der z -Achse einfallende ebene Welle der Lichtwellenlänge λ erfährt demnach an der Domänengrenze einen Phasensprung $2\Delta\varphi$ (siehe Abb. 5.1a). Durch den Phasensprung wird die Phasenfront der ebenen Welle an der Domänenwand geteilt, und es entsteht ein Interferenzmuster zwischen den Lichtwellen an beiden Seiten der Domänenwand, wie es in schematisch in Abb. 5.1b gezeigt ist. Für den Phasensprung $2\Delta\varphi$ gilt:

$$\begin{aligned} 2\Delta\varphi &= \frac{4\pi}{\lambda}(\Delta n_o d + n_o \Delta d) = \frac{2\pi}{\lambda}(-r_{113}n_o^3 + 2n_o \frac{e_{333}}{C_{333}})E d \\ &= \frac{2\pi}{\lambda}(-r_{113}n_o^3 + 2n_o \frac{e_{333}}{C_{333}})U \quad , \end{aligned} \quad (5.2)$$

mit der Kristalldicke d , der angelegten Spannung U , sowie den passenden

Elementen des piezoelektrischen und des Steifheitstensors, e_{333} und C_{333} . Dabei wird sowohl die elektrooptische Brechungsindexänderung Δn_o (Gl. 2.2) als auch die Dickenänderung Δd auf Grund des piezoelektrischen Effektes (Gl. 2.3) berücksichtigt. Der Phasensprung $\Delta\varphi$ hängt also abgesehen von Materialparametern nur von der Lichtwellenlänge λ und der angelegten Spannung U ab, wobei sich die Werte für r_{113} und n_o ebenfalls mit λ ändern.

a) Phase:



b) Intensität:

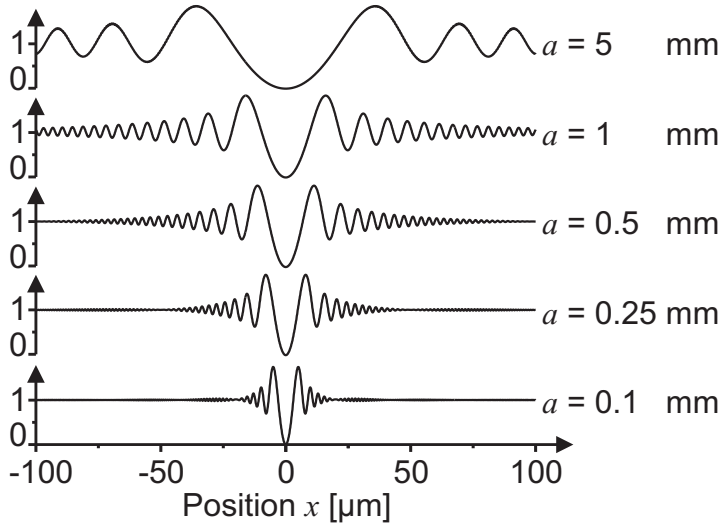


Abb. 5.1: a) Prinzip der Domänenvisualisierung im Nahfeld. Die Domänengrenze bewirkt bei einem elektrischen Feld $E \neq 0$ in einer einfallenden ebenen Welle einen Phasensprung $2\Delta\varphi$.

b) Intensitätsverteilungen in unterschiedlichen Abständen a hinter dem Kristall für einen Phasensprung $2\Delta\varphi = \pi$, berechnet mit Gl. A.2. Es wird eine homogene Intensitätsverteilung bei $a = 0$ angenommen. LiNbO_3 , Lichtwellenlänge $\lambda = 351 \text{ nm}$

Auf diese Weise lassen sich alle beobachteten Phänomene erklären: Bewegt man die für die Abbildung benutzte Linse aus dem Fokus heraus (stellt man die Abbildung also unscharf), so bildet man effektiv den transmittierten Strahl bei einem größerem Abstand a vom Kristall ab. Dadurch erhält man ein breiteres, besser sichtbares Interferenzmuster mit mehr Linien, aber einer geringeren räumlichen Auflösung. Durch Anlegen einer Spannung U an den Kristall, wird der Phasensprung $2\Delta\varphi$ gemäß Gl. 5.2 geändert. Der Kontrast des Interferenzmusters ist maximal für $2\Delta\varphi = (2m + 1)\pi$ und verschwindet vollständig für $2\Delta\varphi = m2\pi$, jeweils mit einer beliebigen ganzen Zahl m . Aus den Werten für r_{113} und n_o in

Tabelle 2.1 kann die erwartete Spannungsdifferenz $\Delta U_{2\pi}$ zwischen zwei Kontrastminima für eine gegebene Lichtwellenlänge λ berechnet werden. In Tabelle 5.2 sind die so berechneten Werte und die gemessenen Werte ΔU_{\min} aus Tabelle 4.2 zusammengestellt. Die theoretischen Werte sind in guter Übereinstimmung mit den Messwerten.

λ [nm]	ΔU_{\min} [kV]	$\Delta U_{2\pi}$ [kV]	$(2\Delta\varphi/\Delta U)^{\text{theo}}$ [kV ⁻¹]
351	1.5	1.4	1.4π
364	1.8	1.6	1.3π
455	3.5	3.7	0.5π
488	4.1	4.5	0.4π

Tab. 5.2: Vergleich der gemessenen Spannungsdifferenz ΔU_{\min} zwischen Kontrastminima im Nahfeld-Beugungsmuster mit den theoretischen Werten $\Delta U_{2\pi}$ für unterschiedliche Lichtwellenlängen λ in LiNbO₃. Zusätzlich angegeben ist das berechnete Verhältnis von Phasendifferenz und angelegter Spannung $(2\Delta\varphi/\Delta U)^{\text{theo}}$.

Allerdings liegt das erste Minimum nicht bei $U = 0$ kV wie erwartet. Dies wird verständlich, wenn man das interne Feld E_{int} berücksichtigt, das nach dem Polen im Kristall verbleibt (vgl. Abschnitt 2.2.2). Unterzieht man den Kristall einer thermischen Behandlung, welche das interne Feld „löscht“, verschiebt sich das Minimum zu $U = 0$ kV. Für UV-Licht ist das interne Feld zur Visualisierung der Domänen ausreichend, da große r_{113} und n_o zusammen mit einem kleinen λ auch ohne äußeres elektrisches Feld einen deutlichen Phasensprung $\Delta\varphi$ erzeugen. Um Domänen mit sichtbarem Licht zu visualisieren, sollte allerdings ein externes elektrisches Feld angelegt werden.

Das Kontrastminimum bei $U = 0.8$ kV für LiNbO₃ entspricht einem internen Feld $E_{\text{int}}^* = 1.6$ kV/mm. Dies ist weniger als das über die Koerzitivfeldstärke bestimmte $E_{\text{int}} = 2.3$ kV/mm (siehe Abschnitt 5.1). Diese Abweichung ist nicht überraschend, da E_{int} in Abschnitt 2.2.2 als reine Hilfsgröße zur Beschreibung der Differenz in den Koerzitivfeldstärken für die Vorwärts- und die Rückwärtspolung eingeführt wurde, ohne dass dabei klar war, ob es sich um ein „reales“, messbares elektrisches Feld handelt [31]. Die vorliegende Messung ist unseres Wissens die erste direkte Messung von E_{int} .

Das beobachtete „Nachleuchten“ der Domänenwände in LiTaO₃ wird durch die vergleichsweise langsame „schnelle Relaxation“ erklärt: Das Koerzitivfeld braucht einige Sekunden, um nach einem Umpolvorgang (einer Domänenwandbewegung) wieder zu relaxieren. In dieser Zeit existiert eine Felddifferenz zwischen dem gerade umgepolten Bereich und dem bereits vorher umgepolten Bereichen, obwohl die ursprüngliche Domänenwand schon verschwunden ist. Dafür verantwortlich sind wieder interne elektrische Felder, dieses Mal allerdings handelt es sich aber um die internen Felder der schnellen Relaxation (das E_1 aus Gl. 5.1). Die Felddiffe-

renz erzeugt eine Brechungsindexdifferenz und ist so im Nahfeld-Beugungsmuster sichtbar. LiNbO_3 zeigt kein merkliches Nachleuchten, da die Relaxation deutlich schneller abläuft (vgl. Abschnitt 5.1).

5.4 Beugungsmuster von Domänen im Fernfeld

In diesem Abschnitt sollen die Lichtmuster erklärt werden, die hinter teilgepolten Kristallen im Fernfeld auftreten. Darunter fallen die Lichtablenkung an der einzelnen Domänenwand, die Sternmuster bei spontanen Domänenmustern und die Punktmuster für PPLN. Diese drei Phänomene sind mit dem selben Aufbau und unter ähnlichen experimentellen Bedingungen messbar. Die untersuchten LiNbO_3 -Kristalle unterscheiden sich dabei im wesentlichen nur in den Domänenstrukturen. Es ist deswegen sinnvoll anzunehmen, dass hinter den Lichtmustern der gleiche physikalische Effekt steht und allein die verschiedenen Domänenstrukturen für die beobachteten Unterschiede verantwortlich sind. Im Folgenden wird daher das Prinzip der Beugungsmuster im Fernfeld zuerst am einfachsten Domänenmuster, der einzelnen Domänenwand, diskutiert und danach auf die komplizierteren spontanen Domänenstrukturen übertragen. Beugungsmuster von PPLN-Kristallen zeigen auf Grund ihrer Regelmäßigkeit einige Besonderheiten und werden deshalb zum Schluss behandelt.

5.4.1 Lichtbeugung an einer einzelnen Domänenwand

Beleuchtet man eine einzelne Domänenwand, so wird ein Teil des einfallenden Lichts abgelenkt (Abb. 4.14). Die Richtung und der Winkel der Ablenkung werden dabei durch das Vorzeichen und den Betrag des angelegten elektrischen Feldes E bestimmt. Wie lässt sich diese Ablenkung erklären?

Das generelle Verhalten einer ebenen Lichtwelle beim Durchgang durch einen linear-elektrooptischen Kristall mit einer Domänenwand bei einem elektrischen Feld $E \neq 0$ wurde bereits im vorhergehenden Abschnitt besprochen und in Abb. 5.1 schematisch dargestellt: Durch die unterschiedlichen Brechungsindizes auf beiden Seiten der Domänenwand durchläuft die Welle unterschiedliche optische Weglängen. Dadurch wird die Welle in zwei Teilwellen mit einem Phasensprung $2\Delta\varphi$ gemäß Gl. 5.2 aufgespalten. Dieses einfache Modell kann die Lichtablenkung nicht erklären und muss deshalb erweitert werden.

In dem Modell aus Abb. 5.1 wird davon ausgegangen, dass die Phasendifferenz $2\Delta\varphi$ zwischen den beiden entstandenen Teilwellen zu einem abrupten Phasensprung hinter der Domänenwand führt. Das ist aus mehreren Gründen unrealistisch:

- Beugung am Brechungsindexsprung: Den abrupten Phasensprung gemäß Abb. 5.1 erhält man nur im Bild der geometrischen Optik. Tatsächlich

wird die einlaufende ebene Welle schon im Kristall am Brechungsindexsprung der Domänenwand gebeugt. Dadurch wird die Phasenänderung an der Domänenwand „ausgeschmiert“, so dass sich die Phase kontinuierlich über einen gewissen Bereich ändert. Dies ist analog zum bekannten Beispiel der Beugung von Licht an einer undurchsichtigen Halbebene (also an einem Sprung des komplexen Brechungsindex): statt einer klar definierten Grenze zwischen Licht- und Schattenbereich erhält man einen kontinuierlichen Intensitätsübergang (Abb. 5.2).

- Piezoelektrische Dickenänderung: An der Domänenwand ändert sich das Vorzeichen aller Elemente des piezoelektrischen Tensors e_{ijk} . Entsprechend wird sich bei $E \neq 0$ die Kristalldicke d gemäß Gl. 2.3 auf der einen Seite der Domänenwand um Δd erhöhen und auf der anderen Seite um Δd verringern. Diese Dickenänderung kann nicht unmittelbar an der Domänenwand erfolgen, sondern muss über einen gewissen Bereich um die Domänenwand herum verteilt sein. Diese graduelle Dickenänderung sorgt ebenfalls dafür, dass sich die Phase kontinuierlich an der Domänenwand ändert.
- Spannungsdoppelbrechung: Auch ohne angelegtes elektrisches Feld treten an einer Domänenwand Spannungen auf, die zu Spannungsdoppelbrechung führen. Auch diese Änderungen des Brechungsindex können die Phase einer transmittierten ebenen Welle beeinflussen.

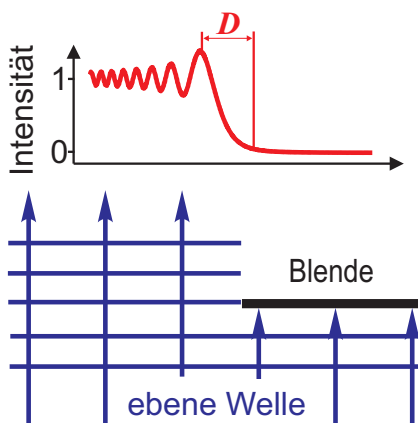


Abb. 5.2: Beugung an einem Absorptionssprung, hier eine undurchsichtigen Halbebene, als Analogie zur Beugung an einem Brechungsindexsprung. Obwohl die Absorption eine scharfe Grenze besitzt, erhält man einen kontinuierlichen Übergang von der Licht- zur Schattenregion. Die ungefähre Breite dieses Übergangs D ist eingezeichnet.

Auf Grund dieser unterschiedlichen Effekte ist der genaue Phasenfrontverlauf hinter der Domänenwand nicht bekannt. Als erste Näherung wird daher eine lineare Änderung der Phase über einen Bereich der Breite D angenommen. Dies ist schematisch in Abb. 5.3 dargestellt. Die Interferenzmuster zwischen den beiden Teilwellen hinter der Domänenwand aus Abb. 5.1 ändern sich durch diese Erweiterung des Modells kaum. Aber, da sich Licht senkrecht zur Phasenfront

ausbreitet, wird das Licht im Bereich der linearen Phasenänderung um den Winkel α_{\max} abgelenkt. Für α_{\max} kann man aus der Skizze eine einfache geometrische Abschätzung ablesen:

$$\alpha_{\max} \approx \frac{\lambda \Delta\varphi}{\pi D} \approx -\frac{n_o^3 r_{133} E d}{D} . \quad (5.3)$$

Die erste Näherung gilt für kleine Winkel. In der zweiten Näherung wird das $\Delta\varphi$ aus Gl. 5.2 eingesetzt, wobei die Phasenänderung auf Grund der piezoelektrischen Änderung der Dicke vernachlässigt und nur die dominierende Phasenänderung durch den elektrooptischen Effekt berücksichtigt wird. Diese Näherung wird im Folgenden bei allen Rechnungen verwendet. Man beachte auch, dass für diese und alle weiteren Überlegungen das Gesetz von Snellius erfüllt ist, da die Berechnung über die Phase erfolgt, die sich an der Grenzfläche nicht ändert. Das α_{\max} bezeichnet also den Winkel in Luft.

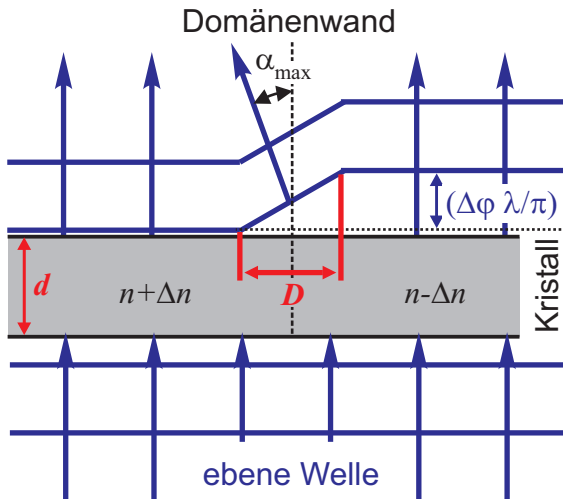


Abb. 5.3: Prinzip der Lichtablenkung im Fernfeld. Die Domänenwand bewirkt bei einem elektrischen Feld $E \neq 0$ eine Änderung der optischen Weglänge von $\Delta\varphi \lambda / \pi$. Gezeigt ist schematisch das Phasenprofil vor und hinter der Domänenwand. Im Gegensatz zum Modell in Abb. 5.1 erfolgt der Phasensprung an der Domänengrenze nicht abrupt, sondern verläuft linear über einen Bereich D . Dadurch wird ein Teil der Wellenfront um den Winkel α abgelenkt.

Die geometrische Abschätzung liefert bereits die beobachtete Abhängigkeit der Ablenkungsrichtung vom Vorzeichen von E und des Ablenkungswinkels vom Betrag von E . Um zu überprüfen, ob das einfache Modell auch die in den Abbildung 4.14b zu sehenden Intensitätsverteilungen erklären kann, wird das entstehende Beugungsmuster mit Gl. A.2 berechnet. Für die Intensitätsverteilung hinter dem Kristall wird ein Gaußprofil angenommen, die Phase hinter dem Kristall ist bis auf den Phasensprung konstant. Es wird also nicht berücksichtigt, dass die Domänenwand im Experiment mit dem Beugungsmuster einer Kreisblende beleuchtet wurde. Ansonsten werden die experimentellen Parameter der Messung

übernommen, der einzige freie Parameter ist die Breite der linear verlaufenden Phasenänderung D . Abbildung 5.4 zeigt die so berechnete Intensitätsverteilung für $E = 12 \text{ kV/mm}$ und $D = 14 \mu\text{m}$ sowie die entsprechende gemessene Kurve.

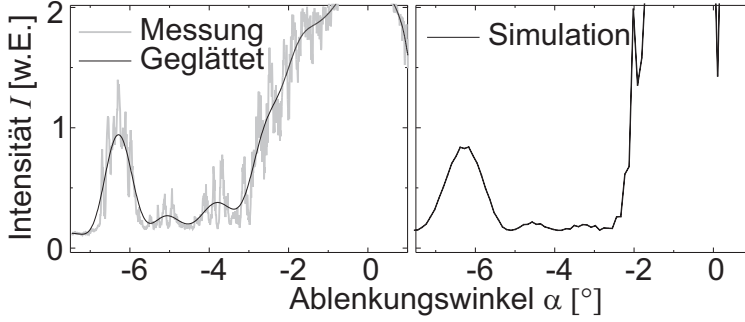


Abb. 5.4: Vergleich der gemessenen Intensitätsverteilung hinter einer einzelnen Domänenwand mit der aus dem Modell aus Abb. 5.3 berechneten.

Bestimmung des freien Parameters D

Die Breite der linear verlaufenden Phasenänderung D ist als einziger freier Parameter eine entscheidende Größe des hier vorgestellten Modells. Um zu prüfen, ob der Wert für D sinnvoll gewählt ist, soll er auf unterschiedliche, voneinander unabhängige Arten bestimmt werden. Folgende Möglichkeiten zur Bestimmung von D stehen zur Verfügung:

- Über den Ablenkungswinkel: Wie oben beschrieben hängt der Ablenkungswinkel α_{\max} direkt von D ab: je größer D , um so kleiner wird α .
- Über die Breite des Hauptbeugungsmaximums: Die Größe des Hauptbeugungsmaximums hängt ebenfalls von D ab: je kleiner D ist, um so stärker wird das Licht gebeugt und um so breiter wird das Maximum. Um D zu bestimmen, wird das Beugungsmuster für verschiedene D mit Gleichung A.2 berechnet und die so simulierte Breite des Hauptbeugungsmaximums mit der gemessenen verglichen.
- Über die abgebeugte Lichtleistung: Nach dem Modell aus Abb. 5.3 wird die Lichtleistung der ebenen Welle aus dem Bereich D vollständig abgelenkt, während die restliche Leistung im Hauptstrahl verbleibt. Der abgebeugte Anteil P_D an der Gesamtleistung P_0 wächst also mit D . Eine einfache geometrische Überlegung liefert:

$$\frac{P_D}{P_0} \approx \frac{2r_B D}{\pi r_B^2} . \quad (5.4)$$

Dabei ist r_B der Radius des beleuchteten Bereichs.

Anhand der in Abb. 5.4 gezeigten Messung (Lichtwellenlänge $\lambda = 351$ nm, Kristalldicke $d = 0.5$ mm, angelegtes elektrisches Feld $E = 12$ kV/mm) erhält man für die Breite der linear verlaufenden Phasenänderung: $D = 14$ μm aus dem Ablenkwinkel, $D = 16$ μm aus der Breite des Hauptbeugungsmaximums und $D \approx 10$ μm aus der Messung der abgebeugten Leistung in Abb. 4.15. Der freie Parameter D des Modells aus Abb. 5.3 wurde also auf drei verschiedene, unabhängige Arten bestimmt. Die ermittelten Werte von 10–16 μm stimmen dabei im Rahmen der Messungenauigkeiten überein.

Simulation der Phase am Ausgang des Kristalls

Wie oben beschrieben, spielt Beugung am Brechungsindexsprung im Kristall vermutlich eine entscheidende Rolle bei der Entstehung der linear verlaufenden Phasenänderung hinter der Domänenwand. Dieser Beitrag soll im Folgenden abgeschätzt werden. Dazu wird die Phasenverteilung hinter dem Kristall simuliert. Eine entsprechende Näherungsformel (Gl. A.6) wird im Anhang A.2 hergeleitet. Als Ausgangspunkt wird eine homogene Phasen- und Intensitätsverteilung an der Eintrittsfläche des Kristalls angenommen. Abbildung 5.5 zeigt die simulierte Phasenverteilung an der Austrittsfläche des Kristalls für verschiedene Kristalldicken d . Wie erwartet sieht man einen kontinuierlichen Phasenverlauf. Die Breite dieses Phasenverlaufs nimmt mit der Kristalldicke zu und liegt in der gemessenen Größenordnung für D .

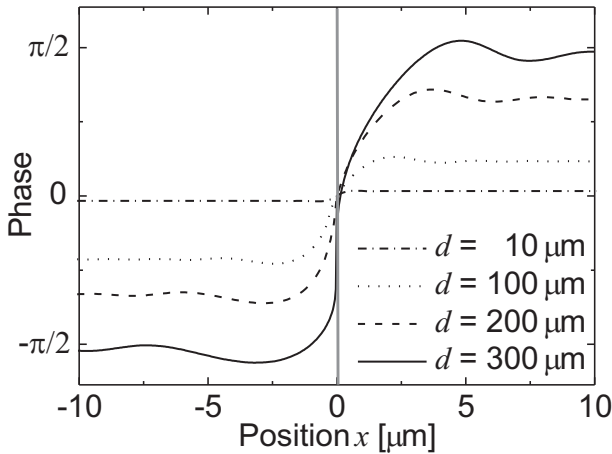


Abb. 5.5: Simulation der Beugung am Brechungsindexsprung im Kristall. Aufgetragen ist die berechnete Phase am Ausgang des Kristalls für verschiedene Kristalldicken d . Die Domänenwand verläuft bei $x = 0$. Lichtwellenlänge $\lambda = 351$ nm, angelegtes elektrisches Feld $E = 2$ kV/mm.

Die simulierte Phasenänderung verläuft offenbar nicht linear. Trotzdem ist es sinnvoll, an der Näherung mit dem linearen Phasenverlauf festzuhalten, bis die Einflüsse des piezoelektrischen Effektes und der Spannungsdoppelbrechung genauer quantifiziert werden können. Es ist zwar wahrscheinlich, dass Beugung den wesentlichen Anteil zur Phasenänderung liefert (vgl. dazu auch die Diskussion der Abhängigkeit des Sternmusters von der Kristalldicke im nächsten Abschnitt).

Allerdings bestimmen die anderen Beiträge die Ausgangssituation für die Lichtbeugung: So können schon geringe Änderungen der Brechungsindexverteilung auf Grund des piezoelektrischen Effektes dazu führen, dass sich die Phasenverteilung am Ausgang des Kristalls deutlich ändert. Es ist also nicht einfach möglich, die Beiträge der einzelnen Effekte voneinander zu separieren.

Es ist wichtig an dieser Stelle darauf hinzuweisen, dass Beugung am Brechungsindexsprung im Kristall neben der Phasen- natürlich auch die Intensitätsverteilung beeinflusst. Der Effekt ist aber vergleichsweise gering. Es wird deshalb im Folgenden wie bisher auch von einer ungestörten Intensitätsverteilung an der Austrittsfläche des Kristalls ausgegangen.

5.4.2 Sternförmige Lichtmuster bei spontanen Domänenstrukturen

Das Modell für die Lichtablenkung an der einzelnen Domänenwand lässt sich direkt auf den Fall der spontanen Domänenmuster übertragen. Weil der mittlere Abstand zwischen den Domänenwänden in der Regel größer ist als die Breite der linearen Phasenänderung D , stören sich die einzelnen Domänenwände in erster Näherung gegenseitig nicht. Man kann daher die einzelnen Strahlen im Fernfeld-Beugungsmuster des gesamten Kristalls als statistisch verteilte Überlagerung der Fernfeld-Beugungsmuster der einzelnen Domänenwände betrachten. Aussagen, die über statische Betrachtungen hinausgehen und sich auf konkrete Domänenstrukturen beziehen, machen in diesem Zusammenhang auf Grund der Komplexität der spontanen Domänenmuster wenig Sinn. Mit dieser Einschränkung soll im Folgenden versucht werden, die beobachteten Fernfeld-Beugungsmuster zu erklären.

Domänenwände und Symmetrie

Das auffälligste Merkmal der Sternmuster ist ihre hohe Symmetrie. Da das Licht senkrecht zu den Domänenwänden abgelenkt wird, findet sich die Symmetrie der Domänen im Fernfeld-Beugungsmuster wieder: die hexagonalen Domänen in LiNbO_3 erzeugen ein 6-strahliges, die dreieckigen Domänen in LiTaO_3 ein 3-strahliges Sternmuster. Analoges gilt für das Beugungsmuster der quasi-spontanen Domänenstruktur mit ihren zusätzlichen Domänenwandrichtungen (Abbildungen 4.22–4.23). Dabei ist immer zu berücksichtigen, dass die Lichtablenkung nur in eine der beiden möglichen Richtungen erfolgt, abhängig vom Vorzeichen des elektrischen Feldes.

In LiNbO_3 verlaufen die Domänenwände gerade entlang den vorgegebenen Kristallrichtungen. Daher zeigt das Beugungsmuster zumindest für große Domänen sehr scharfe, wohldefinierte Strahlen (Abbildungen 4.22b und 4.24), wie sie auch nach dem Modell zu erwarten wären. Kleinere Domänen erzeugen dagegen Strah-

len, die deutlich breiter sind und einen schwächeren Kontrast zum Hintergrund aufweisen (Abb. 4.22a). Dies lässt sich dadurch erklären, dass bei kleineren Domänen der relative Einfluss der Ecken gegenüber den geraden Domänenwänden zunimmt. Stoßen zwei Domänenwände in einer Ecke zusammen, so gilt die oben gemachte Annahme, dass die Beugungsmuster der Domänenwände unabhängig voneinander sind, nicht mehr. Dies führt im Beugungsmuster offenbar zu einer Verbreiterung der Strahlen. Im Extremfall sehr kleiner hexagonaler Domänen (Größe $\ll D$) erhält man so statt einzelner Strahlen ein konzentrisches Ringmuster. Dies sieht man z. B. ganz zu Beginn des Polungsvorgangs, wenn ausschließlich sehr kleine Domänen vorhanden sind (Abb. 4.37b–c). Auch die Beobachtung, dass man bei einem vollständig ausgeprägten Sternmuster immer noch sehr schwach ein konzentrisches Ringmuster ausmachen kann (Abb. 4.22a–b), lässt sich vermutlich auf neu entstandene sehr kleine Domänen zurückführen. Im Gegensatz zu LiNbO_3 sind die Domänenwände in LiTaO_3 merklich gebogen (Abb. 4.23d). Entsprechend überstreichen die Strahlen im Beugungsmuster von LiTaO_3 bei jeder Domänengröße einen gewissen Winkelbereich und sind nicht so scharf abgegrenzt wie für LiNbO_3 (z. B. in den Abbildungen 4.23b und 4.26). Trotzdem erscheinen auch in LiTaO_3 die Strahlen bei großen Domänen schärfer als bei kleinen Domänen (dies erkennt man z. B. in Abb. 4.36A).

Abhängigkeit vom elektrischen Feld

Das angelegte elektrische Feld E bestimmt die Richtung und den Winkel der Lichtablenkung an der Domänenwand. Nach der einfachen geometrischen Abschätzung aus Gl. 5.3 ist eine lineare Abhängigkeit der Sterngröße vom Betrag von E zu erwarten. Dies ist sowohl für LiNbO_3 (Abb. 4.25) als auch für LiTaO_3 (Abb. 4.27) in erster Näherung erfüllt. Für kleine elektrische Felder stimmen der Winkel des Hauptbeugungsmaximums α_{\max} und der Öffnungswinkel α_o nicht mehr überein (vgl. Abschnitt 4.3.4), so dass Gl. 5.3 keine gute Beschreibung der Messwerte mehr liefert.

Allerdings sind die Kurven aus Abb. 4.25 und Abb. 4.27 zu positiven elektrischen Feldern hin verschoben, so dass die Minima der Öffnungswinkel nicht wie von Gl. 5.3 vorhergesagt bei $E = 0$ kV/mm liegen, sondern bei $E = 1.6$ kV/mm für LiNbO_3 und bei $E = 2$ kV/mm für LiTaO_3 . Dies lässt sich wie schon beim Nahfeld-Beugungsmuster auf die internen elektrischen Felder E_{int} zurückführen, die einen Offset zum angelegten elektrischen Feld E bewirken. Werden die internen elektrischen Felder durch Tempern der Kristalle gelöscht, verschiebt sich das Minimum auf den erwarteten Wert, wie Abb. 4.32 demonstriert.

Die Abhängigkeit der Richtung der Lichtablenkung vom Vorzeichen des elektrischen Feldes lässt sich z. B. am Beugungsmuster von großen Domänen in LiTaO_3 (Abbildungen 4.36-3 und 4.36-4) verfolgen. Wird das Vorzeichen von E geändert, so kehren sich die Richtungen der Strahlen im Sternmuster um. Wegen der drei-

eckigen Domänen in LiTaO_3 führt das zu einer scheinbaren Drehung des Beugungsmusters um 60° . Bei sehr kleinen Domänen in LiTaO_3 wird diese Richtungsänderung von einem anderen Effekt überlagert (siehe unten), in LiNbO_3 ist sie auf Grund der hexagonalen Symmetrie der Domänen nicht zu sehen.

Abhängigkeit von der Lichtwellenlänge

Das vorliegende Modell kann auch erklären, warum der Öffnungswinkel α_o des Beugungsmusters für größere Wellenlängen λ abnimmt, anstatt die von der Beugung an optischen Gittern bekannte Abhängigkeit $\sin \alpha_o \propto \lambda$ zu zeigen: Dazu wird der Öffnungswinkel des Beugungsmusters für unterschiedliche λ sowohl nach Gl. 5.3 geometrisch abgeschätzt als auch mit Gl. A.2 unter voller Berücksichtigung der Beugung berechnet. In beiden Fällen wird vereinfacht angenommen, dass sich der freie Parameter D über dem untersuchten Wellenlängenbereich nicht ändert. Die entsprechenden Kurven sind in Abb. 5.6 zusammen mit den Messwerten aufgetragen. Die beste Anpassung erhält man mit $D = 14 \mu\text{m}$ für die geometrische Abschätzung und mit $D = 15 \mu\text{m}$ für die vollständige Simulation inklusive Beugung. Schon die einfache geometrische Abschätzung zeigt die beobachtete Abnahme der Sterngröße bei zunehmendem λ . Verantwortlich dafür ist die Abnahme der Phasendifferenz $\Delta\varphi$ mit steigender Wellenlänge λ (bei konstantem E). Dies ist beispielsweise in Tab. 5.2 an der Phasenänderung pro angelegter Spannung $(2\Delta\varphi/\Delta U)^{\text{theo}}$ abzulesen. Die vollständige Simulation kann die gemessenen Öffnungswinkel im untersuchten Wellenlängenbereich gut beschreiben.

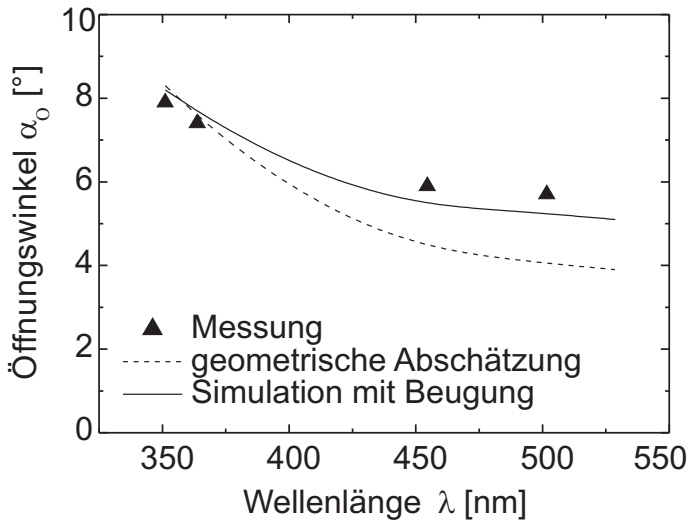


Abb. 5.6: Vergleich der gemessenen Wellenlängenabhängigkeit des Öffnungswinkels des Sternmusters in LiNbO_3 mit den Ergebnissen unterschiedlicher Simulationsrechnungen.

Abhängigkeit von der Kristalldicke

Ein wichtiger Prüfstein für die vorgestellte Theorie ist die Abhängigkeit der Größe des Beugungsmusters von der Kristalldicke d . Wie Abb. 4.31 belegt, hat eine Änderung von d bei konstant gehaltenem elektrischen Feld E nur einen sehr geringen Einfluss auf den Ablenkungswinkel des Hauptmaximums α_{\max} . Dieses Verhalten erscheint zuerst überraschend, da sich die Phasendifferenz $\Delta\varphi$ linear mit der Kristalldicke d erhöht (Gl. 5.2). Damit der Ablenkungswinkel α_{\max} konstant bleibt, muss gemäß Gl. 5.3 die Breite der linear verlaufenden Phasenänderung D in gleicher Weise mit d wachsen. Dies bestätigt die zu Beginn des Abschnitts gemachte Vermutung, dass im wesentlichen Beugung am Brechungsindexsprung im Kristall für den kontinuierlich verlaufenden Phasenübergang (und damit das D) verantwortlich ist. Beugungsmuster werden bei zunehmendem Abstand a von der Störung, z. B. auf Grund dickerer Kristalle, breiter (vgl. Gln A.2–A.4). So zeigt die Simulation in Abb. 5.5, dass sich bei zunehmender Kristalldicke d nicht nur die Phasendifferenz sondern auch die Breite des Übergangs ändert. Wäre dagegen hauptsächlich ein gradueller Brechungsindexübergang an der Domänenwand für die kontinuierliche Phasenänderung verantwortlich, so wäre D in erster Näherung unabhängig von der Kristalldicke und die Größe des Sterns würde linear mit d wachsen.

Einfluss der Domänengröße auf das Sternmuster in LiTaO_3

Kongruent schmelzendes LiTaO_3 zeigt in Abb. 4.36 ein 3-strahliges Sternmuster für $E > 0$ kV/mm und ein 6-strahliges Sternmuster für $E < 0$ kV/mm, ohne dass sich an der dreieckigen Domänenstruktur etwas ändert. Dies scheint dem bisher entwickelten Modell zu widersprechen: Wenn das Vorzeichen des elektrischen Feldes nur die Richtung der Lichtablenkung bestimmt, wie kann sich dann die Symmetrie des Beugungsmusters verändern? Einen Hinweis dazu liefert die Beobachtung der Sternmuster bei positivem und negativem E für unterschiedliche Domänengrößen in Abb. 4.36: der Unterschied zwischen den Sternmustern ist am größten bei kleinen Domänen, während die Sterne bei größeren Domänen praktisch deckungsgleich sind.

Dieses Verhalten lässt sich am einfachsten im Bild der geometrischen Optik als Lichtreflexion in kleinen Domänen veranschaulichen. Abbildung 5.7 zeigt dies schematisch am Beispiel einer kleinen dreieckigen Domäne. Licht wird an der Domänenwand in Richtung des höheren Brechungsindexes abgelenkt (Abb. 5.7a und b). Bei einem positiven elektrischen Feld E bedeutet dies, dass der Lichtstrahl aus der dreieckigen Domäne heraus abgelenkt wird. Dadurch erhält man den bekannten 3-strahligen Stern (Abb. 5.7c links). Im Gegensatz dazu wird bei einem negativen E das Licht in die dreieckige Domäne hinein abgelenkt. Für kleine Domänen und einen hinreichend dicken Kristall werden die abgelenkten

Strahlen die gegenüberliegenden Domänenwände schneiden (Abb. 5.7b rechts) und dabei zumindest teilweise reflektiert. So entsteht ein 6-strahliges Sternmuster (Abb. 5.7c rechts). Alternativ kann man die dreieckige Domäne auch als Wellenleiter betrachten. Die Abhängigkeit vom Vorzeichen der angelegten Spannung ergibt sich dann dadurch, dass die Struktur nur dann als Wellenleiter funktioniert, wenn der Brechungsindex im Inneren höher als Außen ist.

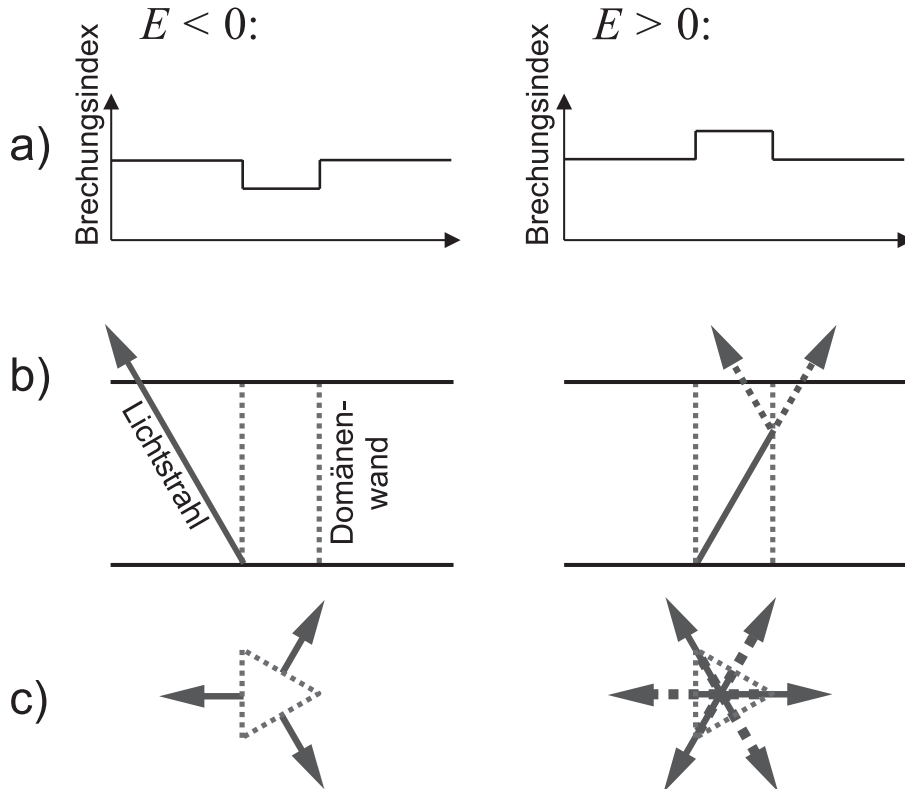


Abb. 5.7: Prinzip der Entstehung eines 3-strahligen bzw. 6-strahligen Sternmusters für kleine Domänengrößen bei positiven (linke Seite) bzw. negativen (rechte Seite) angelegten elektrischen Feldern E . Gezeigt ist die jeweilige Brechungsindexverteilung (a), der dazugehörige Querschnitt durch die Domänen (b), sowie die Draufsicht entlang der z -Achse des Kristalls (c).

Dieser Mechanismus funktioniert nur für kleine Domänengrößen. Eine einfache geometrische Abschätzung zeigt, dass für eine Kristalldicke $d = 0.5$ mm und ein externes elektrisches Feld $E = -12$ kV/mm nur bei Domänengrößen von $\lesssim 25$ μ m Reflexion innerhalb der Domäne auftritt. Dieser Wert stimmt ungefähr mit den Domänengrößen in Abb. 4.36-1 und 4.36-2 überein. Wenn die Domänen wachsen und miteinander verschmelzen hat das zwei Auswirkungen: Die Anzahl der kleinen Domänen nimmt ab und entsprechend verlieren drei der sechs Strahlen an Intensität (Abb. 4.36-2). Gleichzeitig schrumpft der noch nicht umgepolte Be-

reich des Kristalls seinerseits teilweise auf kleine dreieckige Domänen zusammen. In dieser Phase des Polens existieren also für beide z -Achsen-Orientierungen kleine dreieckige Domänen. Entsprechend erhält man unabhängig vom Vorzeichen des angelegten elektrischen Feldes ein Beugungsmuster mit drei starken Strahlen (durch die „direkte“ Ablenkung) und drei schwachen Strahlen (durch Ablenkung mit darauf folgender Reflexion an einer Domänenwand, Abb. 4.36-3 und 4.36-4). Dieses Phänomen lässt sich an LiNbO_3 -Kristallen nicht beobachten, da dort der Stern auf Grund der hexagonalen Domänenform immer sechs Strahlen aufweist und sich somit abgelenkte und reflektierte Strahlen überlagern.

Dynamik

Die Abbildungen 4.37 und 4.38 zeigen die Dynamik des Fernfeld-Beugungsmusters beim Umpolen eines LiNbO_3 - bzw. LiTaO_3 -Kristalls. Diese Dynamik lässt sich weitgehend als Resultat der zunehmenden mittleren Domänenengröße verstehen.

Der Umpolprozess beginnt mit dem Auftreten sehr kleiner Domänen, oder Polungskeime. Wie oben erklärt, erwartet man für diese Domänen wegen der Dominanz der Ecken ein nahezu rundes Beugungsmuster im Fernfeld, wie es in den Abbildungen 4.37b und 4.38b auch zu sehen ist. Die Ecken scheinen auch für das Auftreten einzelner Punkte (Abb. 4.37b) bzw. Kreisbögen (Abb. 4.38a) verantwortlich zu sein, obwohl der genaue Zusammenhang unklar ist, da kein Modell für die Lichtbeugung an den Ecken zur Verfügung steht. Allerdings kann einfache Beugung an den Domänenwänden hier nicht die Ursache sein, da in LiTaO_3 die Kreisbögen in einem 60° -Winkel zu den späteren Strahlen stehen. Im Beugungsmuster von LiNbO_3 ist eine 60° -Abweichung zwischen den Punkten und den Strahlen auf Grund der hexagonalen Symmetrie nicht erkennbar, es ist aber eine sinnvolle Annahme, dass hinter den Punkten in LiNbO_3 der gleiche Effekt steht wie hinter den Kreisbögen in LiTaO_3 .

Das Auftreten des Sternmusters (Abbildungen 4.37c–d und 4.38c–d) wurde bereits behandelt. Man sieht in beiden Fällen, dass die Strahlen mit fortschreitender Polung schärfer hervortreten. Auch dies lässt sich wie oben gezeigt durch die zunehmende Domänenengröße während des Umpolens erklären.

Einfluss von UV-Licht auf die Domänensymmetrie

Die Messungen des Fernfeld-Beugungsmusters von LiNbO_3 bei Beleuchtung mit Licht der Wellenlänge $\lambda = 334 \text{ nm}$ (Abbildungen 4.39 und 4.40) zeigen, dass UV-Licht nicht nur die Koerzitivfeldstärke beeinflusst. Wie in Abschnitt 5.1 beschrieben ist, verlaufen die Domänenwände in LiNbO_3 normalerweise streng entlang von drei Vorzugsrichtungen. An den Sternmustern in Abb. 4.39 kann man aber

indirekt verfolgen, wie UV-Licht diesen Zwang zur Symmetrie zerstört:

Während des ersten Polungszyklus mit Beleuchtung bleibt die hexagonale Symmetrie der Domänenwände erhalten, man sieht den normalen 6-strahligen Stern (Abb. 4.39a). Aber schon während des darauf folgenden Polungszyklus, ändert sich das Beugungsmuster, und man erkennt den Übergang zu einem 12-strahligen Sternmuster (Abb. 4.39b). Diese Änderung der Symmetrie des Beugungsmusters muss, wenn die obige Erklärung des Musters als Lichtablenkung senkrecht zu den Domänenwänden korrekt ist, mit dem Auftreten von Domänenwänden im 30° -Winkel zu den bereits vorhandenen Domänengrenzen zusammenhängen. Im nächsten Polungszyklus, ändert sich das Beugungsmuster noch stärker: Man erkennt zwar immer noch Vorzugsrichtungen im Beugungsmuster, allerdings erhält man anstatt deutlich ausgeprägter, scharf definierter Strahlen sehr breite, schwach definierte Strahlen. Dies wird zum Teil daran liegen, dass die Domänen kleiner sind als vorher, aber auch daran, dass die Domänenwände jetzt starke Abweichungen von den Vorzugsrichtungen aufweisen. Tatsächlich wird kaum noch Licht in die ursprünglichen Richtungen der Strahlen gebeugt, was darauf hindeutet, dass nur noch wenige Domänenwände entlang den originalen Richtungen verlaufen.

Die Untersuchung des geätzten Kristalls (Abb. 4.40) bestätigt die anhand des Fernfeld-Beugungsmusters gemachten Vermutungen: Die Domänen zeigen keine klare Symmetrie oder ausgezeichnete Richtungen. Das auffällige labyrinthartige Muster kommt möglicherweise von Variationen in der Intensität des verwendeten Laserstrahls oder von Inhomogenitäten im Kristall. Man sieht auch vergleichsweise viele kleine Domänen, was die Vermutung, dass UV-Licht die Anzahl der Polungskeime erhöht, bestätigt.

Einen zusätzlichen Beleg für die Beeinflussung der Domänensymmetrie mit UV-Licht liefert das „quasi-spontane“ Domänenmuster in Abb. 4.23a und c. Auch in diesem Fall wurde die Probe mit UV-Licht beleuchtet. Wie in Abb. 4.39b sieht man den Übergang von einem 6-strahligen zu einem 12-strahligen Sternmuster. Im Gegensatz dazu besteht das lichtdefinierte Domänenmuster in Abb. 4.9 und Abb. 4.10 aus hexagonalen Domänen, obwohl es ebenfalls intensiv mit UV-Licht (allerdings im Multiline-Betrieb) beleuchtet wurde.

Die Abweichung von der Symmetrie bildet eine interessante Parallele zu mit Magnesium dotiertem LiNbO_3 . Mit zunehmendem Magnesiumgehalt nimmt das Koerzitivfeld von LiNbO_3 ab [33]. Gleichzeitig wird beobachtet, dass bei höherem Magnesiumgehalt die Domänen stärker von der hexagonalen Symmetrie abweichen können [69]. Es ist bekannt, dass in diesen Materialien die Mg-Ionen anstatt der intrinsischen Störstellen Niob-auf-Lithium-Platz eingebaut werden [70]. Daher unterstützt das ähnliche Verhalten in den beleuchteten Proben wiederum die andere Spekulation, dass UV-Licht die intrinsischen Störstellen in LiNbO_3 beeinflusst.

5.4.3 Periodisch gepoltes Lithiumniobat

Wie schon bei den spontanen Domänenstrukturen, kann man auch das Fernfeld-Beugungsmuster eines PPLN-Kristalls näherungsweise als Überlagerung der Beugungsmuster der einzelnen Domänenwände erklären. Im Gegensatz zu den statistisch verteilten spontanen Domänenstrukturen bilden die Domänenwände bei PPLN-Kristallen ein regelmäßiges Muster; mit anderen Worten ein *Gitter*. Dementsprechend finden sich viele Eigenschaften optischer Gitter im Beugungsbild der PPLN-Kristalle wieder.

Der Grund, warum periodisch gepoltes LiNbO_3 im Fernfeld ein Beugungsmuster mit diskreten, äquidistanten Beugungsmaxima aufweist, ist einfach: Die periodische Inversion des elektrooptischen Tensors erzeugt bei einem angelegten elektrischen Feld ein elektrooptisches Brechungsindexgitter im Kristall. Höhere Beugungsordnungen treten auf, da dieses Brechungsindexgitter nicht sinusförmig ist. Die gemessenen Ablenkungswinkel α_n für das n -te Beugungsmaximum bei der Lichtwellenlänge λ , stimmen mit dem theoretischen Wert

$$\sin \alpha_n = \frac{n\lambda}{\Gamma} \quad (5.5)$$

für ein Beugungsgitter der Periodenlänge Γ überein. Abbildung 4.20 zeigt den gemessenen Winkel zwischen zwei benachbarten Maxima ($\alpha_{n+1} - \alpha_n$) über der Lichtwellenlänge λ zusammen mit dem theoretischen Verlauf

$$(\alpha_{n+1} - \alpha_n) \approx \frac{\lambda}{\Gamma} \quad (5.6)$$

für die Periodenlänge $\Gamma = 29.5 \text{ } \mu\text{m}$. Die Übereinstimmung zwischen Messwerten und Theorie ist sehr gut. Auch in diesem Fall sorgt das interne elektrische Feld E_{int} dafür, dass ein Beugungsmuster auch ganz ohne äußeres elektrisches Feld sichtbar ist. Dass man durch einfaches Beleuchten eines PPLN-Kristalls (also ohne angelegtes elektrisches Feld) ein Punktmuster sieht, haben Bermudéz et al. bereits beobachtet [71]. Allerdings haben sie keine Verbindung zu elektrooptischen Brechungsindexgittern gezogen.

Um die Intensitätsverteilung der Beugungsmaxima zu verstehen, wird das Modell der einzelnen Domänenwand auf den Fall eines periodisch gepolten Kristalls erweitert. Abbildung 5.8a zeigt einen Ausschnitt aus der angenommenen Lichtverteilung hinter dem Kristall. Es wird davon ausgegangen, dass die Intensität eine Gaußverteilung bildet. Die je nach Domänenorientierung unterschiedlichen optischen Weglängen im Kristall führen zu einer modulierten Phasenverteilung. Dabei wird an jeder Domänenwand berücksichtigt, dass sich die Phase linear über einen Bereich der Breite D ändert. Für dieses Modell wird nach der Rayleigh-Sommerfeld-Formel (Gl. A.2) das dazugehörige Fernfeld-Beugungsmuster in Abhängigkeit vom angelegten elektrischen Feld E berechnet.

Das simulierte Beugungsmuster in Abb. 5.8b zeigt das gleiche Verhalten wie das gemessene (z. B. in Abb. 4.16): Die Intensität jedes einzelnen Beugungsmaximums ist periodisch mit dem angelegten elektrischen Feld E moduliert. Dabei entspricht die Periodizität ΔE_B dem elektrischen Feld $\Delta E_{2\pi}$, welches für eine elektrooptische Phasendifferenz von $2\Delta\varphi = 2\pi$ zwischen Domänen notwendig ist. Tatsächlich, stimmen die gemessenen E_B (Tabelle 4.3) für alle verwendeten Wellenlängen λ im Rahmen der Messgenauigkeit mit den gemessenen $E_{2\pi} = \Delta E_{\min}$ (Tabelle 4.2) und dem berechneten $\Delta E_{2\pi} = \Delta U_{2\pi}/d$ (Tabelle 5.2) überein. Wie beim beobachteten Beugungsmuster zeigt auch die Simulation, dass für zunehmende elektrische Felder ein größerer Teil der Lichtleistung in höhere Beugungs-

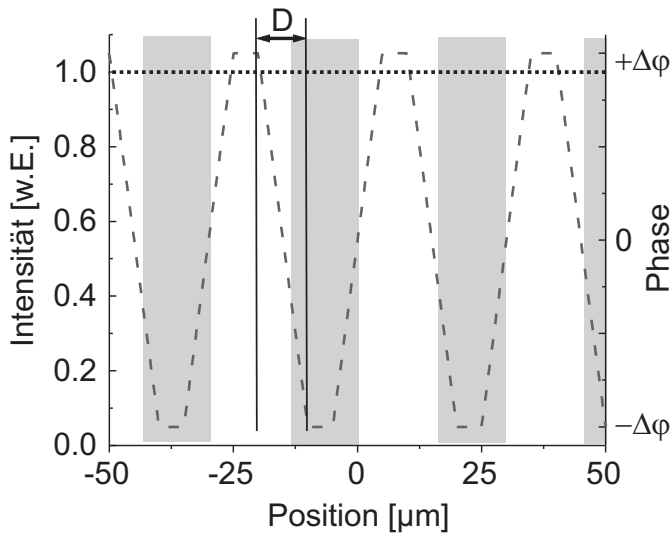
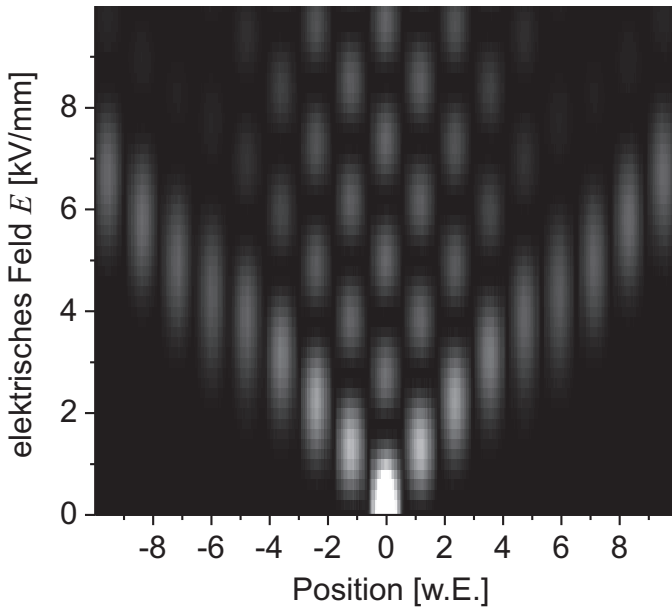


Abb. 5.8: a) Intensitäts- (gepunktete Kurve) und Phasenverteilung (gestrichelte Kurve) hinter einem PPLN-Kristall wie sie zur Simulation des Beugungsmusters benutzt werden. Die grau schattierten Bereiche kennzeichnen die invertierten Domänen. b) Das dazugehörige simulierte Fernfeld-Beugungsmuster für angelegte elektrische Felder von 0 bis 10 kV/mm.



maxima abgebeugt wird. Setzt man $D = 0$, d. h. vernachlässigt man die Beugung im Kristall, so verschwindet dieser Effekt, und das simulierte Beugungsmuster I wird perfekt periodisch: $I(E) = I(E + \Delta E_{2\pi})$. Es ist also auch für PPLN nötig die kontinuierliche Phasenänderung über einen Bereich D an den Domänenwänden zu berücksichtigen, um das entstehende Beugungsmuster zu verstehen.

Nach den bisherigen Überlegungen sollte die gesamte einfallende Lichtleistung in die diskreten Beugungsmaxima abgebeugt werden. Abbildung 4.16 zeigt jedoch einen deutlichen Intensitätsuntergrund zwischen den Maxima. Dieser Streuuntergrund könnte darauf zurückzuführen sein, dass die verwendeten PPLN-Proben nicht perfekt periodisch sind, da die Breite der gepolten Streifen leicht variiert (siehe Abb. 4.6). Da keine Proben mit wohldefinierten Abweichungen in der Periodizität zur Verfügung stehen, wird der Zusammenhang zwischen Streuuntergrund und Probenhomogenität theoretisch überprüft. Dazu wird das Modell aus Abb. 5.8a übernommen und um statistisch verteilte Fluktuationen im Tastverhältnis von Periode zu Periode erweitert. Variationen in der Periodenlänge werden nicht berücksichtigt, da diese durch die Periodizität der lithographischen Maske sehr genau festgelegt werden kann. Ein typisches Resultat zeigt Abb. 5.9. Aufgetragen sind die Intensitätsverteilungen der Beugungsmuster für perfekte Periodizität und für zwei Kristalle mit statistisch variierenden Tastverhältnissen. Als Maß für die Fluktuationen wird die Standardabweichung σ der Breite der gepolten Streifen genommen. Die Kurven zeigen eine deutliche Korrelation zwischen der Kristallinhomogenität und dem Intensitätsuntergrund. Daher ist die Messung der gestreuten Intensität zwischen den Maxima eine einfache und trotzdem aussagekräftige Methode zur Bestimmung der PPLN-Qualität.

Was das vorgestellte einfache Modell nicht simulieren kann, sind die Unterschiede im Beugungsmuster zwischen negativen und positiven angelegten elektrischen Feldern, wie sie für Tastverhältnisse $\kappa \neq 0.5$ auftreten (siehe Abbildungen 4.18 und

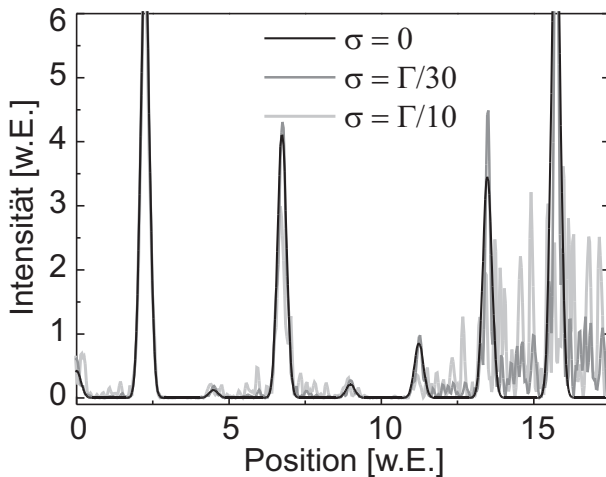


Abb. 5.9: Simulierte Intensitätsverteilung für einen perfekt periodischen PPLN-Kristall und für zwei PPLN-Kristalle mit statistischen Variationen im Tastverhältnis von Periode zu Periode (mit der jeweiligen Standardabweichung σ , angegeben in Bruchteilen der Periodenlänge Γ).

4.19). Das liegt daran, dass hinter dem verwendeten Modell erneut die Annahme steht, der Abstand zwischen den Domänenwänden ist groß genug, so dass sie sich im Bezug auf Beugung gegenseitig nicht stören. In diesem Fall kann man an jeder einzelnen Domänenwand separat das Modell aus Abschnitt 5.4.1 mit der linear verlaufenden Phasenänderung über die Breite D anwenden. Die Voraussetzung dafür ist offensichtlich nicht mehr gegeben, wenn die Breite der Domänen $\lesssim D$ ist. In diesem Fall muss bei der Beugung im Kristall mehr als eine Domänenwand berücksichtigt werden. Es ist aber intuitiv klar, dass Unterschiede im Fernfeld-Beugungsmuster bei unterschiedlichen Vorzeichen von E auftreten können: Wie bei den kleinen Domänen in LiTaO_3 können die Streifen des PPLNs als Wellenleiter wirken, wenn der Brechungsindex im Inneren des Streifen höher ist als außen. Für eine PPLN-Struktur mit einem Tastverhältnis $\kappa \neq 0.5$ hängen die Wellenleitungseigenschaften vom Vorzeichen der Brechungsindexänderung und somit vom Vorzeichen des angelegten elektrischen Feldes ab. Dadurch ändert sich auch das Lichtmuster im Fernfeld. Auch ohne ein entsprechendes Modell, kann eine Messung der Intensität des transmittierten Strahls über dem angelegten Feld E wie in Abb. 4.18 eine einfache und zuverlässige Möglichkeit zur Bestimmung des Tastverhältnisses bieten, sofern eine Kalibrationskurve (ähnlich Abb. 4.19) für die entsprechende Periodenlänge zur Verfügung steht.

Eine Variation des verwendeten Aufbaus könnte zudem als elektrooptischer Intensitätsmodulator von Interesse sein (vgl. Abb. 4.16A–D). Vorteile dieser Anordnung sind der hohe Modulationsgrad des Hauptstrahls von nahezu 100% sowie die Unabhängigkeit von der Lichtpolarisation. Ein Hauptnachteil ist die hohe Modulationsspannung. Da die benötigte Spannung aber unabhängig vom Strahldurchmesser ist, könnte es eine praktikable Methode zum Modulieren von großen Strahlen sein. Falls Verluste von 50% akzeptabel sind, könnte der Aufbau sogar zum Schalten bzw. zum Ablenken von Strahlen verwendet werden.

Die in Abb. 4.21 eingeführten zweidimensionalen PPLN-Strukturen lassen sich analog zum eindimensionalen Fall behandeln.

5.5 Fazit

Die in dieser Arbeit entwickelte Methode zur Erzeugung lichtdefinierter Domänenmuster in kongruent schmelzenden LiNbO_3 -Kristallen durch Beleuchtung mit UV-Licht erscheint durchaus vielversprechend. Die mit Licht der Wellenlänge $\lambda = 334 \text{ nm}$ erzielten Koerzitivfeldänderungen sind signifikant (ca. 5%) und für das strukturierte Umpolen wahrscheinlich ausreichend. Die verhältnismäßig geringe Absorption bei der verwendeten Lichtwellenlänge ist von Vorteil, da es dadurch möglich sein sollte, auch dickere Proben zu strukturieren. Ein erster Versuch demonstriert, dass Domänenstrukturen im Mikrometerbereich vergleichsweise einfach zu erzeugen sind. Die erzielte Periodenlänge liegt dabei

ungefähr um den Faktor Zwei über der der kleinsten lithographisch erzeugten PPLN-Kristalle. Allerdings ist es wichtig, den Prozess quantitativ zu untersuchen. Insbesondere wird der genaue Zusammenhang zwischen Koerzitivfeldänderung und Lichtintensität bzw. Lichtdosis benötigt, um einen optimalen Kontrast zu erzielen und die Laserintensität bestmöglich auszunutzen. Ein möglicher Nachteil des Verfahrens ist, dass die Domänenwände nach sehr intensiver UV-Beleuchtung eventuell nicht mehr entlang der Vorzugsachsen verlaufen. Dies kann sich für Anwendungen, die sehr glatte Domänenwände verlangen (z. B. PPLN), als problematisch erweisen. Für andere Domänenstrukturen kann es dagegen sogar einen Vorteil darstellen. Damit die einzelnen Domänen tatsächlich zu den gewünschten Domänenmustern verschmelzen, ist es zudem notwendig, die Umpolung besser zu überwachen und zum richtige Zeitpunkt abubrechen. Dazu wird es im Allgemeinen erforderlich sein, die Domänenstrukturen visualisieren zu können.

Mit den Beugungsmustern im Nah- und im Fernfeld wurden zwei neue Visualisierungsmechanismen für Domänenstrukturen entwickelt. Beide Methoden ergänzen sich: Während im Nahfeld das Verhalten einzelner Domänenwände direkt beobachtet werden kann, liefert das Fernfeld integrierte Informationen über die Richtungen der Domänenwände im Kristall. Letzteres dürfte in vielen Fällen interessant sein. Beispielsweise liefert das Domänenmuster in Abb. 4.23c ohne eine aufwändige Auswertung nur sehr wenige Informationen. Aus dem Beugungsmuster in Abb. 4.23a kann man dagegen mit einem Blick ablesen, dass 12 Domänenrichtungen existieren, und aus den Intensitäten der einzelnen Strahlen kann auf die relative Länge der entlang der jeweiligen Richtung verlaufenden Domänenwände geschlossen werden. Auch für die Untersuchung von periodisch gepolten Strukturen eröffnet die Fernfeld-Beugung die Möglichkeit, wichtige Parameter der Domänenstruktur zu bestimmen, ohne das Domänenmuster im Detail analysieren zu müssen. Allerdings benötigt diese Art der Visualisierung ein externes elektrisches Feld (welches aber beim Polen bereits vorhanden ist). Dagegen kommt das Nahfeldbeugungsmuster bei kürzlich gepolten Proben und kurzen Wellenlängen mit dem internen Feld aus. Beide Methoden ermöglichen die Visualisierung eines Domänenmusters in Echtzeit und in-situ. Gegenüber fast allen anderen Methoden zur Sichtbarmachung von Domänen haben sie zudem den Vorteil der relativen Einfachheit. Hauptnachteil ist, dass eine kohärente Lichtquelle relativ kurzer Wellenlänge (blau oder ultraviolett) benötigt wird. Dennoch stimmen erste Reaktionen auf die Veröffentlichung der Methode optimistisch, dass die entwickelten Visualisierungsverfahren auch über die Gruppe hinaus Anwendung finden werden.

Zum Schluss sei noch bemerkt, dass die sternförmigen Beugungsmuster im Fernfeld nicht mit ähnlichen Effekten auf Grund von Totalreflexion [72], orientierungsabhängigen Unterschieden der optischen Indikatrix in ferroelastischen Kristallen [73] oder holographischer Streuung [74] verwechselt werden dürfen.

6 Ausblick

Das Projekt zur lichtdefinierten Erzeugung von Domänenstrukturen ist mit dieser Dissertation nicht beendet. Im Rahmen einer weiterführenden Untersuchung sind die folgenden Schritte geplant:

1. Untersuchung der UV-Licht-induzierten Koerzitivfeldänderung für LiNbO_3 -Proben von unterschiedlichen Herstellern und mit unterschiedlicher Stöchiometrie. Ziel ist es, die beste LiNbO_3 -Variante für das lichtdefinierte Polen zu finden. Daneben soll die Untersuchung auf mit Magnesium dotierte Proben ausgeweitet werden, um vom niedrigeren Koerzitivfeld und der höheren optischen Robustheit dieser Kristalle zu profitieren [75]. Dieser Schritt ist inzwischen nahezu abgeschlossenen [69].
2. Umfassende Charakterisierung der besten Kristalle aus 1. in Bezug auf die lichtinduzierte Koerzitivfeldänderung. Dabei sollen sowohl die optimalen Parameter für Beleuchtung und Polung ermittelt, als auch Aufschluss über den zu Grunde liegenden Mechanismus gewonnen werden.
3. Kombination des lichtdefinierten Polens mit einer der neu entwickelten Visualisierungsmethoden, um qualitativ hochwertige PPLN-Kristalle herzustellen. Zur Erzeugung des benötigten Lichtmusters ist die Verwendung eines Zweistrahl-Interferenzaufbaus vorgesehen.

Im Bereich der Lichtbeugung an Domänengrenzen wird in Kooperation mit Prof. Sturmman von der Russian Academy of Sciences an einer besseren, analytischen Lösung des Problems der Beugung am Brechungsindexsprung gearbeitet. Diese würde die beim bislang verwendeten Modell notwendige Einschränkung aufheben, dass Domänenstrukturen deutlich größer als die Breite D der linear verlaufenden Phasenänderung sein müssen, und damit die mathematische Beschreibung der Beugungsmuster von kleinen Domänenstrukturen ermöglichen. So könnte z. B. auch das Tastverhältnis von periodisch gepolten Kristallen ohne Kalibrationskurve bestimmt werden.

Ansonsten zeigen erste Reaktionen, dass die entwickelten Visualisierungsverfahren auch bei anderen Arbeitsgruppen, die sich mit ferroelektrischen Domänen beschäftigen, auf Interesse stoßen. Beide Methoden sind nicht auf LiNbO_3 und LiTaO_3 beschränkt, sondern können in allen anderen elektrooptischen und ferroelektrischen Kristallen mit 180° -Domänen angewendet werden, wie beispielsweise Strontium-Barium-Niobat oder Galliumarsenid. Ob auch 90° - oder 60° -Domänen, wie sie z. B. in Kaliumniobat oder Bariumtitanat auftreten, visualisiert werden können, bleibt noch zu klären.

7 Zusammenfassung

Um neue Anwendungsfelder erschließen zu können, müssen optische Komponenten kleiner und damit integrierter werden. Lithiumniobat-Kristalle (LiNbO_3) sind dafür ein vielversprechendes Material. Besondere Aufmerksamkeit haben in letzter Zeit die ferroelektrischen Eigenschaften von LiNbO_3 auf sich gezogen. Für gezielt herstellbare Domänenstrukturen im Mikrometerbereich gäbe es vielfältige Anwendungsmöglichkeiten. Leider lassen sich solche Strukturen mit herkömmlichen Methoden nur schwer oder überhaupt nicht realisieren. Ein weiteres praktisches Problem ist die einfache und zerstörungsfreie Visualisierung bereits erstellter Domänenstrukturen.

Die Beeinflussung des Koerzitivfeldes von LiNbO_3 mit Licht könnte sich als gangbare Alternative für die Domänenstrukturierung erweisen. Dazu wird im Rahmen dieser Arbeit ein Aufbau entwickelt, der das Anlegen hoher elektrischer Felder und die präzise Bestimmung des Koerzitivfeldes bei gleichzeitiger Beleuchtung mit einem Lichtmuster durch transparente Elektroden ermöglicht. Ein integriertes Interferometer erlaubt zudem eine grobe Visualisierung des Polungsvorgangs.

Es werden drei verschiedene Ansätze zur lichtdefinierten Domänenstrukturierung verfolgt. Dabei stellen sich thermische Effekte auf Grund von Absorption und die lichtinduzierte Beschleunigung der Koerzitivfeldrelaxation als ungeeignet heraus. Ultraviolette Beleuchtung mit einer Wellenlänge von 334 nm während des Umpolens kann jedoch die Koerzitivfeldstärke von LiNbO_3 permanent um ca. 5% verringern. Als „proof of principle“ wird die Herstellung einer Domänenstruktur mit einer Periodenlänge von $\approx 8 \mu\text{m}$ demonstriert. Allerdings werden bessere Methoden zur Überwachung des Polungsprozesses benötigt, um Domänenstrukturen hoher Qualität herzustellen.

Deshalb werden die bei dem Durchgang eines kohärenten Lichtstrahls entlang der z -Achse eines teilweise umgepolten LiNbO_3 - oder LiTaO_3 -Kristalls entstehenden Beugungsmuster untersucht, sowohl mit als auch ohne externes elektrisches Feld. Bei der Abbildung des Nahfeld-Beugungsmusters mit Hilfe einer Linse erscheinen die Domänengrenzen als Linien. Im Fernfeld erhält man dagegen, je nach Domänenstruktur, ein Punkt- oder ein Sternmuster.

Alle beobachteten Lichtmuster lassen sich durch Beugung der einfallenden ebenen Lichtwelle an den Domänenwänden erklären: Auf Grund des elektrooptischen Effekts erzeugt ein elektrisches Feld an einer Domänenwand einen Brechungsindexunterschied und generiert damit einen Phasensprung in der transmittierten ebenen Welle. Interferenz zwischen den Wellen auf beiden Seiten dieses Phasensprungs lässt die Domänenwand im Nahfeld sichtbar werden. Beugung am Brechungsindexsprung im Kristall verzerrt die Phase der einfallenden Welle zusätzlich. Dadurch ändert sich Phase nahezu linear in einem Bereich von mehreren Mikrometern um die Domänenwand. Weil sich Licht senkrecht zur

Phasenfront ausbreitet, wird dieser Teil des Lichts in eine Richtung abgelenkt. Bei kleinen Domänen muss zusätzlich die Möglichkeit der Beugung an mehreren Domänenwänden berücksichtigt werden. Je nach Lichtwellenlänge können interne elektrische Felder, wie sie nach dem Polen im Kristall vorhanden sind, für die Beobachtung der Beugungsmuster ausreichen. Ansonsten muss ein externes elektrisches Feld angelegt werden.

Als Visualisierungsmethoden liefern beide Beugungsmuster komplementäre Informationen über die Domänenstruktur. Im Nahfeld können Domänenstrukturen bis zu einer Größe von $\approx 10 \mu\text{m}$ direkt visualisiert werden. Im Gegensatz dazu enthält das Fernfeld-Beugungsmuster integrierte Informationen über die räumliche Verteilung der Domänenwände. Dies ist besonders hilfreich für periodisch gepolte Kristalle, da wichtige Parameter wie Periodenlänge, Tastverhältnis oder Homogenität der Polung direkt aus dem Beugungsmuster ablesbar sind. Sowohl das Nahfeld- als auch das Fernfeld-Beugungsmuster erlauben die Visualisierung des Polungsprozesses von LiNbO_3 in Echtzeit.

In der Fortführung des Projektes ist geplant, die lichtinduzierten Koerzitivfeldänderungen und die neu entwickelten Visualisierungsmethoden zu kombinieren, um periodisch gepolte Kristalle hoher Qualität und kurzer Periodenlänge herzustellen.

A Lichtbeugung

A.1 Skalare Beugungstheorie

Mathematische Behandlungen von Beugung gehen immer von einer einlaufenden, ungestörten Welle aus, deren Intensität und Phase lokal gestört wird. Die skalare Beugungstheorie ermöglicht es, aus einer bekannten Wellenfront die Ausbreitung der Welle zu berechnen. Der Ansatz geht davon aus, dass eine elektromagnetische Welle hinreichend genau durch ein skalares elektrisches Feld E beschrieben werden kann. Dabei ist E komplex, es beschreibt also sowohl die Amplitude als auch die Phase. Polarisierungseffekte werden vernachlässigt.

Beugung wird anschaulich durch das Huygens'sche Prinzip der Elementarwellen erklärt. Jeder Punkt der Wellenfront wird als Erreger einer neuen Kugelwelle angesehen. Ein Beobachter misst dann das aus der Superposition dieser Wellen resultierende elektrische Feld E . Eine mathematische Formulierung dieses Prinzips für homogene, isotrope, lineare Medien liefert das Huygens-Fresnel Prinzip [76]. Dazu wird angenommen, dass das elektrische Feld E der Lichtwelle auf der ganzen Ebene Ω (Koordinaten ξ und η) bekannt ist (vgl. Abb. A.1). Dies ist z.B. der Fall, wenn eine ebene Welle auf einen Streuschirm mit bekannten Eigenschaften einfällt. Am Punkt P_0 der Ebene Σ (Koordinaten ϖ und χ ; $\Sigma \parallel \Omega$) gilt dann:

$$E(P_0) = \frac{n}{i\lambda} \int_{\Omega} E(P_1) \frac{e^{ik_0 r_{01}}}{r_{01}} \psi \, dF \quad . \quad (\text{A.1})$$

Dabei ist n der Brechungsindex im Ausbreitungsmedium, $k_0 = 2\pi/\lambda$ ist die Wellenzahl im Vakuum. Integriert wird über alle Punkte P_1 in der „Gegenstandsebene“ Ω , dabei ist r_{01} der jeweilige Abstand $\overline{P_0 P_1}$. Das ψ ist der sogenannte *Neigungsfaktor*, der die zurücklaufende Welle unterdrückt. Die erste Rayleigh-Sommerfeld Lösung setzt $\psi = \cos \theta = a/r_{01}$, mit dem Winkel θ zwischen dem Vektor $\overrightarrow{P_0 P_1}$ und der Flächennormale von Ω und dem Abstand a zwischen den beiden Ebenen Σ und Ω .

Setzt man die entsprechenden Koordinaten ein, erhält man:

$$E(\varpi, \chi) = \frac{na}{i\lambda} \iint_{\Omega} E(\xi, \eta) \frac{e^{ik_0 r_{01}}}{r_{01}^2} \, d\xi \, d\eta \quad (\text{A.2})$$

mit:

$$r_{01} = \sqrt{a^2 + (\varpi - \xi)^2 + (\chi - \eta)^2} \quad . \quad (\text{A.3})$$

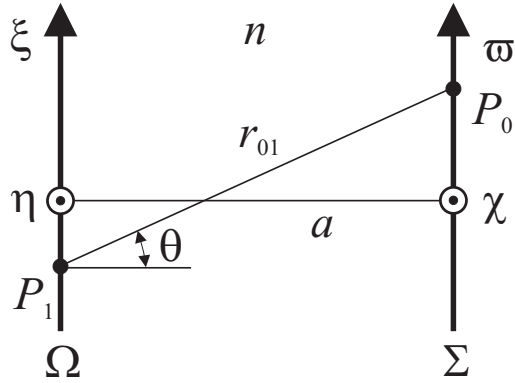


Abb. A.1: Beugungsgeometrie beim Huygens-Fresnel Prinzip.

Diese Formel liegt allen numerischen Berechnungen der Beugung in einem homogenen Medium in dieser Arbeit zu Grunde.

Für gewöhnlich unterscheidet man abhängig vom Abstand a zwei Beugungs-Grundtypen: Hängt sowohl die Form als auch die Größe des Beugungsmusters von a ab, so befindet man sich im Bereich der *Fresnel-Beugung* oder im sogenannten *Nahfeld*. Ändert sich das Beugungsmuster mit zunehmenden Abstand a nur noch in der Größe, aber nicht mehr in der Form, so spricht man von der *Fraunhofer-Beugung* oder vom *Fernfeld*. Mathematisch entspricht der Übergang zum Fernfeld der Fraunhofer-Näherung $r_{01} \approx a$, die für große Abstände und achsnahen Strahlen gilt. Gleichungen A.2 und A.3 werden dadurch stark vereinfacht zu:

$$E(\varpi, \chi) = \frac{n e^{i n k_0 a} e^{i \frac{n k_0}{2a} (\varpi^2 + \chi^2)}}{i \lambda a} \iint_{-\infty}^{+\infty} E(\xi, \eta) \exp \left[-i \frac{2\pi n}{\lambda a} (\varpi \xi + \chi \eta) \right] d\xi d\eta . \quad (\text{A.4})$$

Das ist, bis auf die Vorfaktoren, die Fourier-Transformierte der Feldverteilung in der „Gegenstandsebene“ Ω . Eine grobe Abschätzung besagt [76], dass bei einem Abstand a die Fraunhofer-Näherung streng nur gilt, wenn für den Durchmesser D des streuenden Objektes die Bedingung

$$2nD^2 < a\lambda \quad (\text{A.5})$$

erfüllt ist. In der Praxis sind Fraunhofer-Beugungsmuster jedoch im allgemeinen schon bei deutlich kleineren Abständen zu sehen.

A.2 Beugung an einem Brechungsindexsprung im Kristall

Gleichung A.2 soll auf den Fall eines elektrooptischen Brechungsindexsprungs in LiNbO_3 bzw. LiTaO_3 erweitert werden. Als Ebenen Ω und Σ wählt man die

Einfalls- und Austrittsflächen des Kristalls, für den Abstand a wird die Kristalldicke d genommen (siehe Abb. A.2) Der Brechungsindexsprung führt zu Bereichen mit unterschiedlichen Brechungsindizes n_1 und n_2 im Kristall. Dadurch wird die Strecke r_{01} in zwei Teilstrecken s_1 mit dem Brechungsindex $n = n_1$ und s_2 mit $n = n_2$ aufgeteilt.

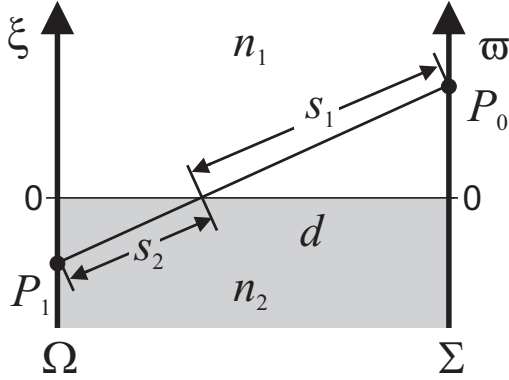


Abb. A.2: Schemazeichnung zur Beugung am Brechungsindexsprung.

Aus Gl. A.2 wird so:

$$E(\varpi, \chi) = \frac{d(n_1 + n_2)}{2i\lambda} \iint_{\Omega} E(\xi, \eta) \frac{e^{i(n_1 s_1 + n_2 s_2)k_0}}{(s_1 + s_2)^2} d\xi d\eta . \quad (\text{A.6})$$

Dabei sind folgende Vereinfachungen eingeflossen:

- Die Doppelbrechung wird vernachlässigt: LiNbO₃ und LiTaO₃ sind doppelbrechend. So besitzt LiNbO₃ eine Doppelbrechung $n_o - n_e = 0.09$ für $\lambda = 532$ nm [20]. Entsprechend erfährt für $\theta \neq 0$ der außerordentlich polarisierte Teil des Lichts einen anderen Brechungsindex als der ordentlich polarisierte Teil. Da es bei der Abschätzung aber um das prinzipielle Verhalten einer ebenen Welle an einen Brechungsindexsprung geht, wird dieser Effekt in Übereinstimmung mit der skalaren Beugungstheorie vernachlässigt und ausschließlich der ordentliche Brechungsindex benutzt.
- Die Änderung des E -Feldes an der dielektrischen Grenzfläche wird vernachlässigt: An der dielektrischen Grenzfläche zwischen zwei Brechungsindizes gilt für die Normalkomponente E_n des elektrischen Feldes:

$$\frac{E_{n1}}{E_{n2}} = \frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} = \sqrt{\frac{n_1}{n_2}} . \quad (\text{A.7})$$

Elektrooptische Brechungsindexänderungen sind verhältnismäßig klein, z.B. bewirkt für LiNbO₃ und $\lambda = 351$ nm ein elektrisches Feld von 1 kV/mm

ein $\Delta n_o = 1.5 \times 10^{-4}$ (Gl. 2.1). Die entsprechende Änderung des Betrags des E -Feldes an einer Domänenwand $E_{n1}/E_{n2} \approx 1.000032$ ist im Vergleich zu der Phasenänderung auf Grund der unterschiedlichen Brechungsindizes vernachlässigbar. So beträgt für das obige Beispiel und für eine Kristalldicke $d = 0.5$ mm die elektrooptische Phasenänderung $\Delta\varphi = 0.42\pi$ (Gl. 2.2)

Literatur

- [1] *Deutsche Agenda Optische Technologien für das 21. Jahrhundert*. VDI-Technologiezentrum, Düsseldorf, 2000.
- [2] National Research Council (Hrsg.) *Harnessing light: Optical science and engineering for the 21st century*. National Academic Press, 1998.
- [3] K. Zintz, „Licht als Schlüssel zur Zukunft“, *Stuttgarter Zeitung* (26. September 2003).
- [4] S. J. Matthews, „The power in crystals“, *Laser Focus World* (March 2003).
- [5] „Market for non-linear optical materials to grow at rate of over 90 percent per year between 2000 and 2005“, *Fiber Optics Business* (15. November 2000).
- [6] B. T. Matthias and J. P. Remeika, „Ferroelectricity in the ilmenite structure“, *Phys. Rev.* **76**, 1886–1887 (1949).
- [7] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, „Interactions between light waves in a nonlinear dielectric“, *Phys. Rev.* **127**, 1918–1939 (1962).
- [8] M. M. Fejer, G. A. Mangel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, „Quasi-phase-matched second harmonic generation: Tuning and tolerances“, *IEEE J. Quant. Electron.* **28**, 2631–2654 (1992).
- [9] M. Yamada, „Electrically induced Bragg-diffraction grating composed of periodically inverted domains in lithium niobate crystals and its application devices“, *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 4010–4016 (2000).
- [10] N. G. Broderick, R. G. W. Ross, H. L. Offerhaus, D. J. Richardson, and D. C. Hanna, „Hexagonally poled lithium niobate: A two-dimensional nonlinear photonic crystal“, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4345–4348 (2000).
- [11] Y. Cho, K. Fujimoto, Y. Hiranaga, Y. Wagatsuma, A. Onoe, K. Terabe, and K. Kitamura, „Tbit/inch² ferroelectric data storage based on scanning nonlinear dielectric microscopy“, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4401–4403 (2002).
- [12] z.B. bei Isowave, Dover N.J., U.S.A.
- [13] M. Houé and P. D. Townsend, „An introduction to methods of periodic poling for second-harmonic generation“, *J. Physics D: Appl. Phys.* **28**, 1747–1763 (1995).
- [14] K. Kintaka, M. Fujimura, T. Suhara, and H. Nishihara, „Third harmonic generation of Nd:YAG laser light in periodically poled LiNbO₃ waveguide“, *Electron. Lett.* **33**, 1459–1461 (1997).

- [15] H. Kogelnik, „Coupled wave theory for thick hologram gratings“, *Bell Syst. Tech. J.* **48**, 2909–2947 (1969).
- [16] K. Nassau, H. J. Levinste, and G. M. Loiacono, „Domain structure and etching of ferroelectric lithium niobate - (pyro- and ferro-electricity antiparallel domains)“, *Appl. Phys. Lett.* **6**, 228–229 (1965).
- [17] F. Kahmann, R. Pankrath, and R. A. Rupp, „Photoassisted generation of ferroelectric domain gratings in SBN“, *Opt. Commun.* **107**, 6–10 (1994).
- [18] S. Chao and C.-C. Hung, „Large photoinduced ferroelectric coercive field increase and photodefined domain pattern in lithium-tantalate crystal“, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3803–3805 (1996).
- [19] *Landolt Börnstein — Numerical data and functional relationships in science and technology, New series* Editor in chief: K.-H. Hellwege, **III/16**. Springer Verlag, 1981.
- [20] R. S. Weis and T. K. Gaylord, „Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure“, *Appl. Phys. A* **37**, 191–203 (1985).
- [21] L. Arizmendi, „Photonic applications of lithium niobate crystals“, *Phys. Stat. Sol.* **201**, 253–283 (2004).
- [22] I. P. Kaminov *An introduction to electrooptic devices*. academic press, 1974.
- [23] S. Fries and S. Bauschulte, „Wavelength dependence of the electrooptic coefficients in $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ “, *Phys. Stat. Sol. (A)* **125**, 369–374 (1991).
- [24] M. Luennemann, U. Hartwig, G. Panotopoulos, and K. Buse, „Electrooptic properties of lithium niobate crystals for extremely high electric fields“, *Appl. Phys. B* **76**, 403–406 (2003).
- [25] M. Jazbinsek and M. Zgonik, „Material tensor parameters of LiNbO_3 relevant for electro- and elasto-optics“, *Appl. Phys. B* **74**, 407–414 (2002).
- [26] K. Kopitzki *Einführung in die Festkörperphysik*. Teubner Studienbücher, 1989.
- [27] S. T. Yang and S. P. Velsko, „Frequency-agile kilohertz repetition-rate optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate“, *Opt. Lett.* **24**, 133–135 (1999).
- [28] Y. L. Lu, T. Wei, F. Duewer, Y. Q. Lu, N. B. Ming, P. G. Schultz, and X. D. Xiang, „Nondestructive imaging of dielectric-constant profiles and ferroelectric domains with a scanning-tip microwave near-field microscope“, *Science* **276**, 2004–2006 (1997).

- [29] Z. H. Hu, P. A. Thomas, A. Snigirev, I. Snigireva, A. Souvorov, P. G. Smith, G. W. Ross, and S. Teat, „Phase-mapping of periodically domain-inverted LiNbO_3 with coherent x-rays“, *Nature* **392**, 690–693 (1998).
- [30] V. Y. Shur, E. L. Rumyantsev, R. G. Batchko, G. D. Miller, M. M. Fejer, and R. L. Byer, „Domain kinetics in the formation of a periodic domain structure in lithium niobate“, *Phys. Solid State* **41**, 1681–1687 (1999).
- [31] V. Gopalan and M. C. Gupta, „Origin of internal field and visualization of 180° domains in congruent LiTaO_3 crystals“, *J. Appl. Phys.* **80**, 6099–6106 (1996).
- [32] V. Gopalan and T. E. Mitchell, „Wall velocities, switching times, and the stabilization mechanism of 180° domains in congruent LiTaO_3 crystals“, *J. Appl. Phys.* **83**, 941–954 (1998).
- [33] M.-L. Hu, L.-J. Hu, and J.-Y. Chang, „Polarization switching of pure and MgO -doped lithium niobate crystals“, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, 7414–7417 (2003).
- [34] G. D. Miller, *Periodically poled lithium niobate: Modelling, fabrication, and nonlinear-optical performance*. PhD thesis, Stanford University, 1998.
- [35] S. Chao, W. Davis, D. D. Tuschel, R. Nichols, M. Gupta, and H. C. Cheng, „Time dependence of ferroelectric coercive field after domain inversion for lithium-tantalate crystal“, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1066–1068 (1995).
- [36] P. T. Brown, G. W. Ross, R. W. Eason, and A. R. Pogosyan, „Control of domain structures in lithium tantalate using interferometric optical patterning“, *Opt. Comm.* **163**, 310–316 (1999).
- [37] P. T. Brown, *Optical and thermal control of domain structures in ferroelectric crystals*. PhD thesis, University of Southampton, 1999.
- [38] V. Gopalan and M. C. Gupta, „Origin and characteristics of internal fields in LiNbO_3 crystals“, *Ferroelectrics* **198**, 49–59 (1995).
- [39] V. Gopalan and M. C. Gupta, „Observation of internal field in LiTaO_3 single crystals: It’s origin and time-temperature dependence“, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 888–890 (1996).
- [40] K. Kitamura, Y. Furukawa, K. Niwa, Y. Gopalan, and T. Mitchell, „Crystal growth and low coercive field 180° domain switching characteristics of stoichiometric LiTaO_3 “, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3073–3075 (1998).

- [41] V. Gopalan, T. E. Mitchell, Y. Furukawa, and K. Kitamura, „The role of nonstoichiometry in 180° domain switching of LiNbO₃ crystals“, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1981–1983 (1998).
- [42] A. Grisard, E. Lallier, K. Polgar, and A. Peter, „Low electric field periodic poling of thick stoichiometric lithium niobate“, *Electron. Lett.* **36**, 1043–1044 (2000).
- [43] V. Gopalan and M. C. Gupta, „Origin and characteristics of internal fields in LiNbO₃ crystals“, *Ferroelectrics* **198**, 49–59 (1997).
- [44] J. H. Ro and M. Cha, „Subsecond relaxation of internal field after polarization reversal in congruent LiNbO₃ and LiTaO₃ crystals“, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2391–2393 (2000).
- [45] G. W. Ross, P. G. R. Smith, and R. W. Eason, „Optical control of electric field poling in LiTaO₃“, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 309–311 (1997).
- [46] M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, and K. Watanabe, „First-order quasi-phase matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation“, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 435–436 (1993).
- [47] G. D. Miller, R. G. Batchko, W. M. Tulloch, D. R. Wiese, M. M. Fejer, and R. L. Byer, „42% efficient single-pass cw second-harmonic generation in periodically poled LiNbO₃“, *Opt. Lett.* **22**, 1834–1836 (1997).
- [48] R. G. Batchko, V. Y. Shur, M. M. Fejer, and R. L. Byer, „Backswitch poling in lithium niobate for high-fidelity domain patterning and efficient blue light generation“, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1673–1675 (1999).
- [49] G. Rosenman, P. Urenski, A. Agronin, Y. Rosenwaks, and M. Molotskii, „Submicron ferroelectric domain structures tailored by high-voltage scanning probe microscopy“, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 103–105 (2003).
- [50] K. Terabe, M. Nakamura, S. Takekawa, K. Kitamura, S. Higuchi, Y. Gotoh, and Y. Cho, „Microscale to nanoscale ferroelectric domain and surface engineering of a near-stoichiometric LiNbO₃ crystal“, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 433–435 (2003).
- [51] C. L. Sones, S. Mailis, W. S. Brockelsby, R. W. Eason and J. R. Owen, „Differential etch rates in z-cut LiNbO₃ for variable HF/HNO₃ concentrations“, *J. of Materials Chemistry* **12(2)**, 295–298 (2002).
- [52] V. Gopalan, S. S. A. Gerstl, A. Itagi, T. E. Mitchell, Q. X. Jia, T. E. Schlesinger, and D. D. Stancil, „Mobility of 180° domain walls in congruent LiTaO₃

- measured using real-time electro-optic imaging microscopy“, *J. Appl. Phys.* **86**, 1638–1646 (1999).
- [53] V. Gopalan, Q. X. Jia, and T. E. Mitchell, „In situ observation of 180° domain kinetics in congruent LiNbO₃ crystals“, *J. Appl. Phys.* **85**, 2304–2311 (1998).
 - [54] M. Flörsheimer, R. Paschotta, U. Kubitscheck, C. Brillert, D. Hofmann, L. Heuer, G. Schreiber, C. Verbeek, W. Sohler, and H. Fuchs, „Second-harmonic imaging of ferroelectric domains in LiNbO₃ with micron resolution in lateral and axial directions“, *Appl. Phys. B* **67**, 593–599 (1998).
 - [55] T. J. Yang, V. Gopalan, P. J. Swart, and U. Mohideen, „Direct observation of pinning and bowing of a single ferroelectric domain wall“, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4106–4109 (1999).
 - [56] B. J. Wicks and M. H. Lewis, „Direct observation of ferroelectric domains in lithium niobate“, *Phys. Stat. Sol.* **26**, 571–576 (1968).
 - [57] H. Bluhm, A. Wadas, R. Wiesendanger, A. Roshko, J. A. Aust, and D. Nam, „Imaging of domain-inverted gratings in LiNbO₃ by electrostatic force microscopy“, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 146–148 (1997).
 - [58] V. Y. Shur, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin, V. L. Kozhevnikov, and A. P. Chernykh, „Kinetics of domain structure and switching currents in single crystals of congruent and stoichiometric lithium tantalate“, *Phys. Solid State* **44**, 2151–2156 (2002).
 - [59] M. E. Lines and A. M. Glass *Principles and applications of ferroelectrics and related materials*. Claredon Press, 1977.
 - [60] G. M. Hale and M. R. Querry, „Optical constants of water in the 200-nm to 200-μm wavelength region“, *Appl. Opt.* **12**, 555–563 (1975).
 - [61] H. Ishizuki, I. Shoji, and T. Taira, „Periodical poling characteristics of congruent MgO:LiNbO₃ crystals at elevated temperature“, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4062–4064 (2003).
 - [62] H. F. Wang, Y. Y. Zhu, S. N. Zhu, and N. B. Ming, „Investigation of ferroelectric coercive field in LiNbO₃“, *Appl. Phys. A* **65**, 437–438 (1997).
 - [63] V. V. Zhdanova, V. P. Klyuev, V. V. Lemanov, I. A. Smirnov, and V. V. Tikhonov, „Thermal properties of lithium niobate crystals“, *Sov. Phys. Solid State* **10**, 1360–1362 (1968).
 - [64] Y. Furukawa, A. Yokotani, T. Sasaki, H. Yoshida, K. Yoshida, F. Nitanda, and M. Sato, „Investigation of bulk laser damage threshold of lithium niobate single crystals by Q-switched pulse laser“, *J. Appl. Phys.* **69**, 3372–3374 (1991).

- [65] H. Kurz, E. Krätzig, W. Keune, H. Engelmann, U. Gonser, B. Dischler, and A. Räuber, „Photorefractive centers in LiNbO_3 , studied by optical-, Mössbauer- and EPR-methods“, *Appl. Phys.* **12**, 355 (1977).
- [66] L. Kovács, G. Ruschhaupt, K. Polgár, G. Corradi, and M. Wöhlecke, „Composition dependence of the ultraviolet absorption edge in lithium niobate“, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2801–2803 (1997).
- [67] S. Kim, V. Gopalan, K. Kitamura, and Y. Furukawa, „Domain reversal and nonstoichiometry in lithium tantalate“, *J. Appl. Phys.* **90**, 2949–2963 (2001).
- [68] D. Berben, K. Buse, and S. Wevering, „Lifetime of small polarons in iron-doped lithium-niobate crystals“, *J. Appl. Phys.* **87**, 1034–1041 (2000).
- [69] M. C. Wengler, B. Fassbender, E. Soergel, and K. Buse, „Impact of ultraviolet light on coercive field, poling dynamics and poling quality of various lithium niobate crystals from different sources“, *eingereicht zur Veröffentlichung bei J. Appl. Phys.*
- [70] N. Iyi, K. Kitamura, Y. Yajimi, S. Kimura, Y. Furukawa, and M. Sato, „Defect structure model of MgO-doped LiNbO_3 “, *J. Solid State Chem.* **118**, 148–152 (1995).
- [71] V. Bermudéz, A. Gil, L. Arizmendi, J. Colchero, A. M. Baró, and E. Diéguez, „Techniques of observation and characterization of the domain structure in periodically poled lithium niobate“, *J. Mater. Res.* **15**, 2814–2821 (2000).
- [72] R. W. Eason, A. J. Boyland, S. Mailis, and P. G. R. Smith, „Electro-optically controlled beam deflection for grazing incidence geometry on domain-engineered interface in LiNbO_3 “, *Opt. Comm.* **197**, 201–207 (2001).
- [73] T. Tsukamoto and H. Futama, „Light deflection induced by ferroelastic layered domains“, *Phase Trans.* **45**, 59–76 (1993).
- [74] P. T. Kleemann, P. Licinio, T. Woike, and R. Pankrath, „Dynamic light scattering at domains and nanoclusters in a relaxor ferroelectric“, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 6014–6017 (2001).
- [75] Y. Furukawa, K. Kitamura, S. Takekawa, K. Niwa, and H. Hatano, „Stoichiometric $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ as an effective material for nonlinear optics“, *Opt. Lett.* **23**, 1892–1894 (1998).
- [76] J. W. Goodman *Introduction to fourier optics*. McGrawHill, 2nd ed., 1996.

Liste eigener Veröffentlichungen:

Als Hauptautor (veröffentlicht):

- M. Müller, E. Soergel, K. Buse, „Influence of ultraviolet illumination on the poling characteristics of lithium niobate crystals“, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1824-1826 (2003)
- M. Müller, E. Soergel, K. Buse, „Visualization of ferroelectric domains with coherent light“, *Opt. Lett.* **28**, 2515-2517 (2003)
- M. Müller, E. Soergel, M. C. Wengler, K. Buse, „Light deflection from ferroelectric domain boundaries“, *Appl. Phys. B* **78**, 367-370 (2004)

Als Hauptautor (zur Veröffentlichung eingereicht):

- M. Müller, E. Soergel, K. Buse, „Light deflection from ferroelectric domain structures in congruently melting lithium tantalate crystals“, eingereicht bei *Appl. Opt.*
- M. Müller, C. Langrock, E. Soergel, K. Buse, M. M. Fejer „Investigation of periodically-poled lithium niobate crystals by light diffraction“, eingereicht bei *J. Appl. Phys.*

Als Mitautor (veröffentlicht):

- I. Nee, M. Müller, K. Buse, „Role of iron in lithium-niobate crystals for the dark-storage time of holograms“, *J. Appl. Phys.* **88**, 4282-4286 (2000)
- I. Nee, M. Müller, K. Buse, „Development of thermally fixed photorefractive holograms without light“, *Appl. Phys. B* **72**, 195-200 (2001)
- M. C. Wengler, M. Müller, E. Soergel, K. Buse, „Poling dynamics of lithium niobate crystals“, *Appl. Phys. B* **76**, 393-396 (2003)
- I. Nee, O. Beyer, M. Müller, K. Buse, „Multichannel wavelength-division multiplexing with thermally fixed Bragg gratings in photorefractive lithium niobate crystals“, *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 1593-1602 (2003)

Danksagung:

An dieser Stelle möchte ich all denen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. K. Buse, der mit meiner Aufnahme in seine Arbeitsgruppe, der interessanten Aufgabenstellung und der kontinuierlichen Unterstützung, diese Arbeit erst möglich gemacht hat.

Frau Dr. E. Soergel gebührt mein Dank für ihre unermüdliche Diskussions- und Hilfsbereitschaft, die mir über manches Problem hinweg geholfen hat. Herrn Dr. A. Hoffmann danke ich für die wertvolle Unterstützung bei allen technischen und elektronischen Fragestellungen.

Für ihren Einsatz und die experimentelle Unterstützung im Rahmen ihrer Diplomarbeit danke ich den Herren Dipl.-Phys. M. Wengler und Dipl.-Phys. M. Falk. Mein Dank gilt auch allen hier ungenannt bleibenden Mitgliedern der Arbeitsgruppe für das angenehme Arbeitsklima und die vielen interessanten Diskussionen.

Bei Herrn Prof. M. M. Fejer (Stanford University, USA) bedanke ich mich für die Einladung zu einem Forschungsaufenthalt in seiner Arbeitsgruppe. Herrn Dipl.-Phys. C. Langrock danke ich für die Betreuung während dieser Zeit und für die Herstellung der PPLN-Proben.

Bei den Mitarbeitern der feinmechanischen und elektronischen Werkstätten in Bonn und Osnabrück bedanke ich mich für die Unterstützung.

Die finanzielle Unterstützung durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft und die Deutsche Telekom möchte ich dankbar erwähnen.

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich, diese Arbeit selbstständig und ohne unerlaubte Hilfe verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet zu haben.

Bonn, den 31. Mai 2004

(Manfred Müller)